



**PATENT APPLICATION**

IN THE UNITED STATES PATENT AND TRADEMARK OFFICE

re the Application of

Yasuyuki KIUCHI et al.

Application No.: 10/673,405

Filed: September 30, 2003

Docket No.: 116754

For: CHARGE-TRANSFER MATERIAL AND PROCESS FOR PRODUCING THE  
SAME, ELECTRON-TRANSFER AGENT, PHOTORECEPTOR FOR  
ELECTROPHOTOGRAPHY AND ORGANIC ELECTROLUMINESCENCE  
ELEMENT USING SAID CHARGE-TRANSFER MATERIAL

**CLAIM FOR PRIORITY**

Commissioner for Patents  
P.O. Box 1450  
Alexandria, VA 22313-1450

Sir:

The benefit of the filing dates of the following prior foreign applications filed in the following foreign country(ies) is hereby requested for the above-identified patent application and the priority provided in 35 U.S.C. §119 is hereby claimed:

Japanese Patent Application No. 2001-274861 Filed September 11, 2001

Japanese Patent Application No. 2001-098301 Filed March 30, 2001

In support of this claim, certified copies of said original foreign applications:

☒ are filed herewith.

It is requested that the file of this application be marked to indicate that the requirements of 35 U.S.C. §119 have been fulfilled and that the Patent and Trademark Office kindly acknowledge receipt of these documents.

Respectfully submitted,

James A. Oliff  
Registration No. 27,075

Thomas J. Pardini  
Registration No. 30,411

JAO:TJP/emt

Date: February 23, 2004

OLIFF & BERRIDGE, PLC  
P.O. Box 19928  
Alexandria, Virginia 22320  
Telephone: (703) 836-6400

DEPOSIT ACCOUNT USE  
AUTHORIZATION  
Please grant any extension  
necessary for entry;  
Charge any fee due to our  
Deposit Account No. 15-0461

日 本 国 特 許 庁  
JAPAN PATENT OFFICE

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office.

出 願 年 月 日  
Date of Application: 2 0 0 1 年 9 月 1 1 日

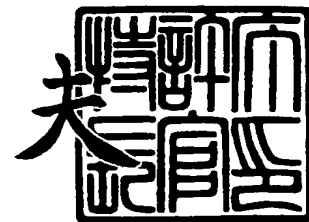
出 願 番 号  
Application Number: 特 願 2 0 0 1 - 2 7 4 8 6 1  
[ST. 10/C]: [ J P 2 0 0 1 - 2 7 4 8 6 1 ]

出 願 人  
Applicant(s): 新電元工業株式会社  
山梨電子工業株式会社  
株式会社 パーマケム・アジア

2 0 0 3 年 1 0 月 1 7 日

特許庁長官  
Commissioner,  
Japan Patent Office

今 井 康 夫



出証番号 出証特 2 0 0 3 - 3 0 8 5 8 4 6

【書類名】 特許願

【整理番号】 01-0123

【あて先】 特許庁長官 殿

【国際特許分類】 G03G 5/06

【発明者】

【住所又は居所】 神奈川県横浜市金沢区鳥浜町 1 4 番地 2 9 株式会社パ  
ーマケム・アジア内

【氏名】 木内 保行

【発明者】

【住所又は居所】 神奈川県横浜市金沢区鳥浜町 1 4 番地 2 9 株式会社パ  
ーマケム・アジア内

【氏名】 佐藤 豊三

【発明者】

【住所又は居所】 神奈川県横浜市金沢区鳥浜町 1 4 番地 2 9 株式会社パ  
ーマケム・アジア内

【氏名】 神山 智子

【発明者】

【住所又は居所】 山梨県甲府市宮原町 1 0 1 4 番地 山梨電子工業株式会  
社内

【氏名】 鈴木 宏記

【発明者】

【住所又は居所】 山梨県甲府市宮原町 1 0 1 4 番地 山梨電子工業株式会  
社内

【氏名】 百瀬 光代

【特許出願人】

【持分】 001/004

【識別番号】 000002037

【氏名又は名称】 新電元工業株式会社

【特許出願人】

【持分】 001/004  
 【識別番号】 000180128  
 【氏名又は名称】 山梨電子工業株式会社

【特許出願人】

【持分】 002/004  
 【識別番号】 000135760  
 【氏名又は名称】 株式会社パーマケム・アジア

【代理人】

【識別番号】 100102875  
 【住所又は居所】 東京都港区虎ノ門 1 丁目 2 番 1 8 号虎ノ門興業ビル 3 階  
 【弁理士】  
 【氏名又は名称】 石島 茂男  
 【電話番号】 03-3592-8691

【選任した代理人】

【識別番号】 100106666  
 【住所又は居所】 東京都港区虎ノ門 1 丁目 2 番 1 8 号虎ノ門興業ビル 3 階  
 【弁理士】  
 【氏名又は名称】 阿部 英樹  
 【電話番号】 03-3592-8691

【先の出願に基づく優先権主張】

【出願番号】 特願2001- 98301  
 【出願日】 平成13年 3月30日

【手数料の表示】

【予納台帳番号】 040051  
 【納付金額】 21,000円

【提出物件の目録】

【物件名】 明細書 1

【物件名】 図面 1

【物件名】 要約書 1

【包括委任状番号】 9715600

【包括委任状番号】 9714297

【プルーフの要否】 要

【書類名】 明細書

【発明の名称】 電荷移動物質、及びその製造方法、電荷移動物質を用いた電子移動剤、電子写真感光体、及び有機エレクトロルミネッセンス素子

【特許請求の範囲】

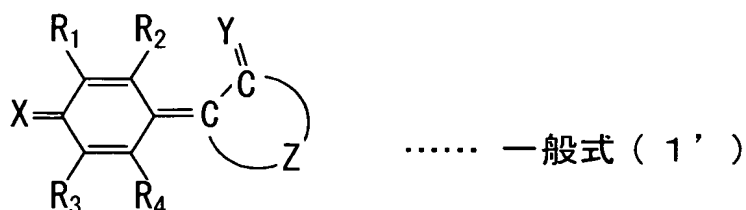
【請求項 1】 下記一般式(1)で表される化合物。

【化 1】



(前記一般式(1)において、置換基 $R_1 \sim R_4$ は、水素原子と、シアノ基と、ニトロ基と、ハロゲン原子と、ヒドロキシ基と、アルキル基と、アリール基と、複素環基と、エステル基と、アルコキシ基と、アラルキル基と、アリル基と、アミド基と、アミノ基と、アシル基と、アルケニル基と、アルキニル基と、カルボキシル基と、カルボニル基と、カルボン酸基とからなる群より選択されるいずれか 1 種類の置換基である。置換基 $X$ は酸素と、イオウと、 $=C(CN)_2$ からなる群より選択されるいずれか一種の置換基である。置換基 $W$ は 4 員環以上 8 員環以下の環であって、上記一般式(1)を下記一般式(1')に書き換えたときに、

【化 2】



置換基 $Y$ は酸素又はイオウのいずれか一方の元素であり、構造 $Z$ は環を構成する 2 以上の原子からなる。)

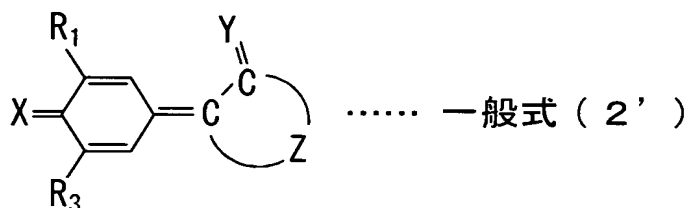
【請求項 2】 下記一般式(2)で表される化合物。

## 【化 3】



(前記一般式 (2) において、置換基  $R_1$ 、 $R_3$  は、水素原子と、シアノ基と、ニトロ基と、ハロゲン原子と、ヒドロキシ基と、アルキル基と、アリール基と、複素環基と、エステル基と、アルコキシ基と、アラルキル基と、アリル基と、アミド基と、アミノ基と、アシル基と、アルケニル基と、アルキニル基と、カルボキシル基と、カルボニルと、カルボン酸基とからなる群より選択されるいずれか 1 種類の置換基である。置換基  $X$  は酸素と、イオウと、 $=C(CN)_2$  とからなる群より選択されるいずれか 1 種類の置換基である。置換基  $W$  は 4 員環以上 8 員環以下の環であって、上記一般式 (2) を下記一般式 (2') に書き換えたときに、

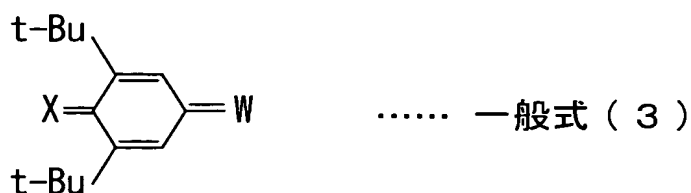
## 【化 4】



置換基  $Y$  は酸素又はイオウのいずれか一方の元素であり、構造  $Z$  は環を構成する 2 以上の原子からなる。)

【請求項 3】 下記一般式 (3) で表される化合物。

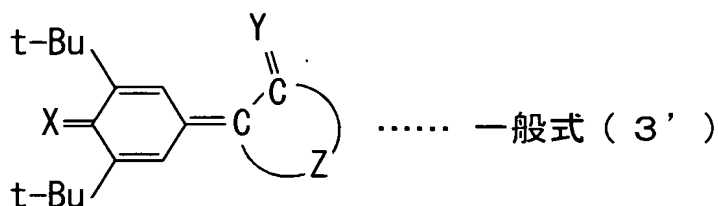
## 【化 5】



(前記一般式 (3) において、置換基  $X$  は酸素と、イオウと、 $=C(CN)_2$  とからなる群より選択されるいずれか 1 種類の置換基である。置換基  $W$  は 4 員環以上 8

員環以下の環であって、上記一般式(3)を下記一般式(3')に書き換えたときに、

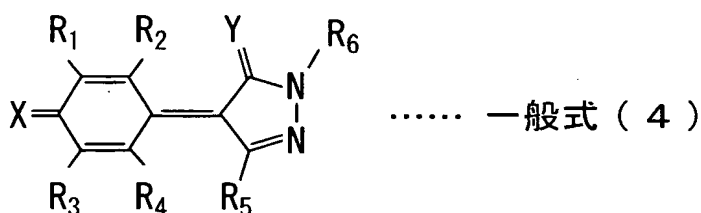
【化6】



置換基Yは酸素又はイオウのいずれか一方の元素であり、構造Zは環を構成する2以上の原子からなる。)

【請求項4】 下記一般式(4)で表される化合物。

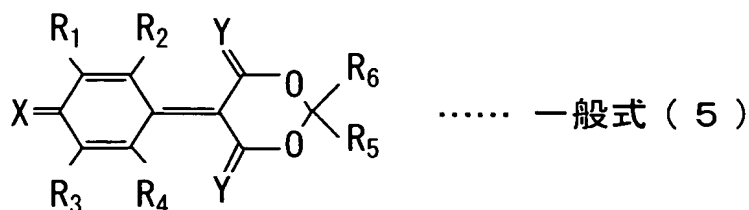
【化7】



(前記一般式(4)において、置換基R<sub>1</sub>~R<sub>6</sub>は、水素原子と、シアノ基と、ニトロ基と、ハロゲン原子と、ヒドロキシ基と、アルキル基と、アリール基と、複素環基と、エステル基と、アルコキシ基と、アラルキル基と、アリル基と、アミド基と、アミノ基と、アシル基と、アルケニル基と、アルキニル基と、カルボキシル基と、カルボニル基と、カルボン酸基とからなる群より選択されるいずれか1種類の置換基である。置換基Xは酸素と、イオウと、=C(CN)<sub>2</sub>とからなる群より選択されるいずれか1種類の置換基であり、置換基Yは酸素又はイオウのいずれか一方の元素からなる。)

【請求項5】 下記一般式(5)で表される化合物。

【化8】

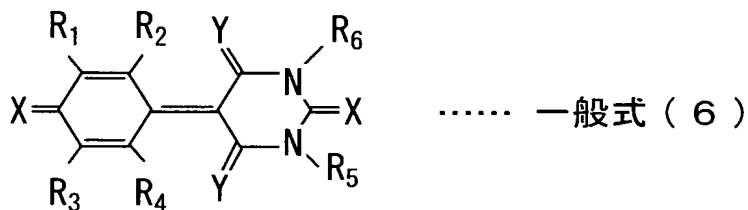




(前記一般式(5)において、置換基 $R_1 \sim R_6$ は、水素原子と、シアノ基と、ニトロ基と、ハロゲン原子と、ヒドロキシ基と、アルキル基と、アリール基と、複素環基と、エステル基と、アルコキシ基と、アラルキル基と、アリル基と、アミド基と、アミノ基と、アシル基と、アルケニル基と、アルキニル基と、カルボキシ基と、カルボニル基と、カルボン酸基とからなる群より選択されるいずれか1種類の置換基である。置換基 $X$ は酸素と、イオウと、 $=C(CN)_2$ とからなる群より選択されるいずれか1種類の置換基であり、置換基 $Y$ は酸素又はイオウのいずれか一方の元素からなる。)

【請求項6】 下記一般式(6)で表される化合物。

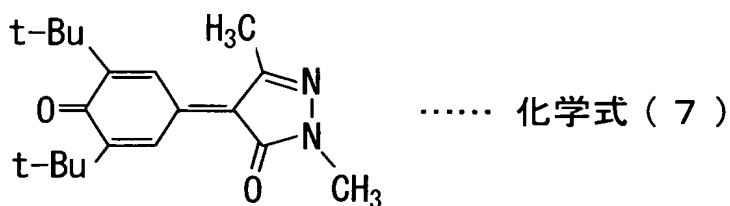
【化9】



(前記一般式(6)において、置換基 $R_1 \sim R_6$ は、水素原子と、シアノ基と、ニトロ基と、ハロゲン原子と、ヒドロキシ基と、アルキル基と、アリール基と、複素環基と、エステル基と、アルコキシ基と、アラルキル基と、アリル基と、アミド基と、アミノ基と、アシル基と、アルケニル基と、アルキニル基と、カルボキシ基と、カルボニル基と、カルボン酸基とからなる群より選択されるいずれか1種類の置換基である。置換基 $X$ は酸素と、イオウと、 $=C(CN)_2$ とからなる群より選択されるいずれか1種類の置換基であり、置換基 $Y$ は酸素又はイオウのいずれか一方の元素からなる。)

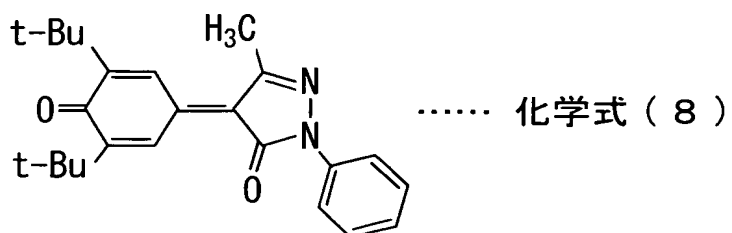
【請求項7】 下記化学式(7)で表される化合物。

【化10】



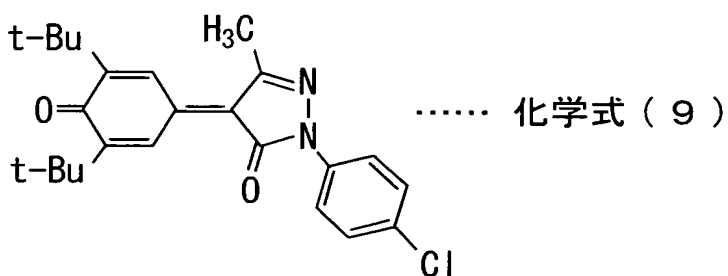
【請求項8】 下記化学式(8)で表される化合物。

## 【化 1 1】



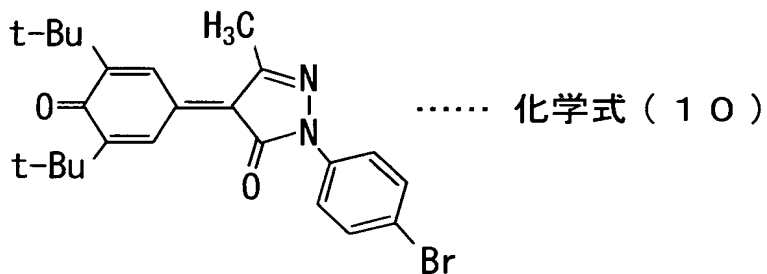
【請求項 9】 下記化学式(9)で表される化合物。

## 【化 1 2】



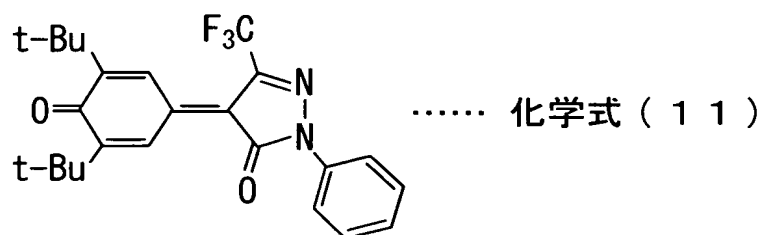
【請求項 10】 下記化学式(10)で表される化合物。

## 【化 1 3】



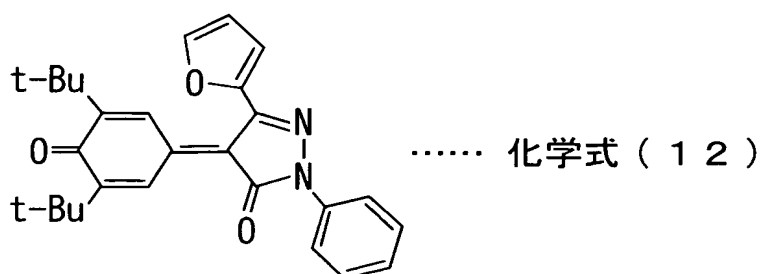
【請求項 11】 下記化学式(11)で表される化合物。

## 【化 1 4】



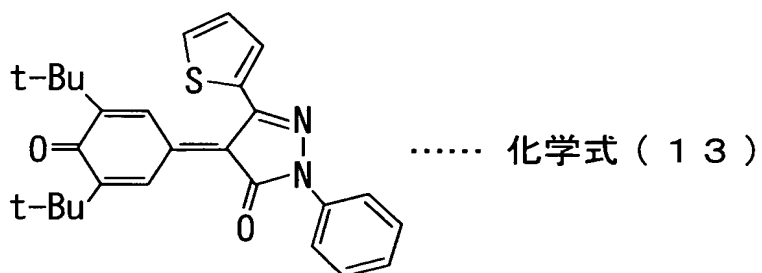
【請求項 1 2】 下記化学式(1 2)で表される化合物。

【化 1 5】



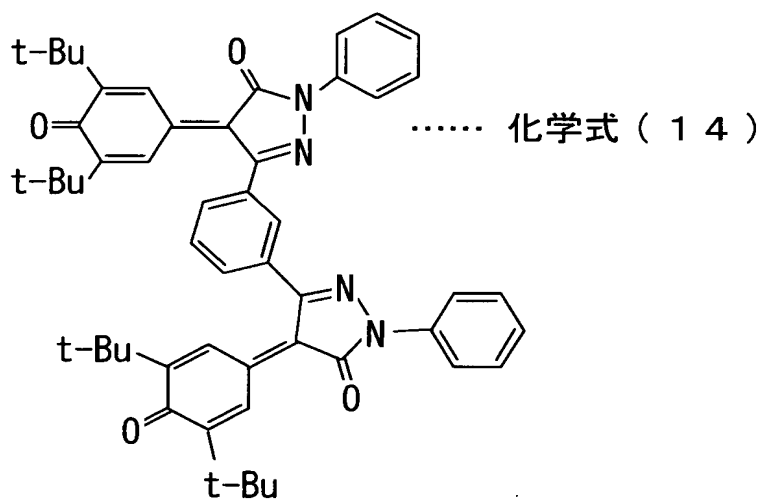
【請求項 1 3】 下記化学式(1 3)で表される化合物。

【化 1 6】



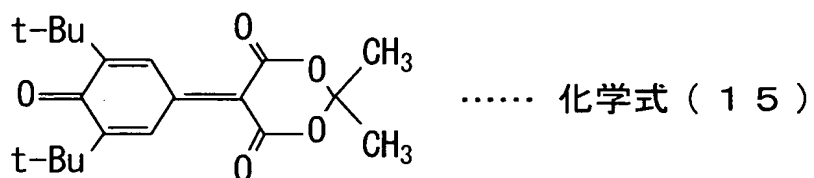
【請求項 1 4】 下記化学式(1 4)で表される化合物。

【化 1 7】



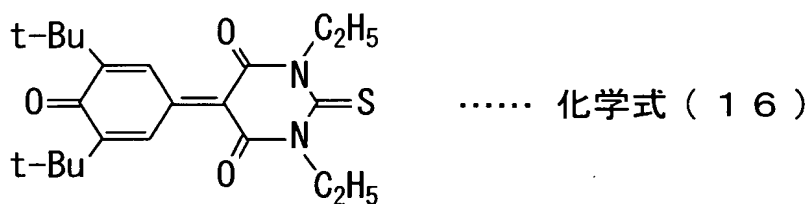
【請求項 1 5】 下記化学式(1 5)で表される化合物。

【化 18】



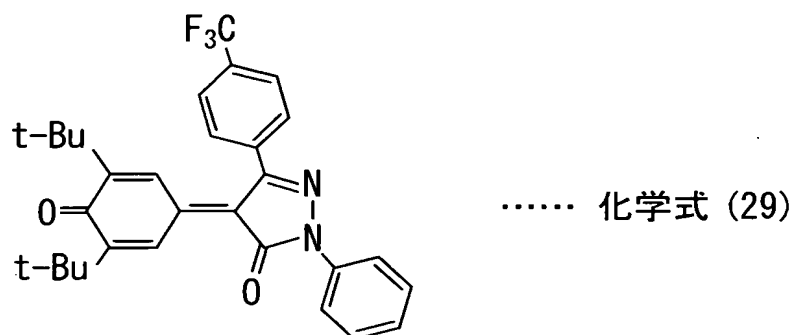
【請求項 16】 下記化学式(16)で表される化合物。

【化 19】



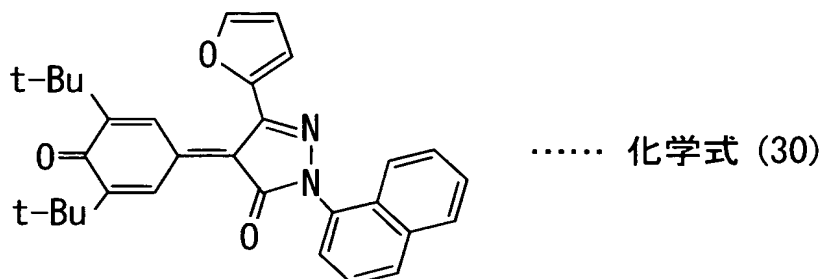
【請求項 17】 下記化学式(29)で表される化合物。

【化 20】



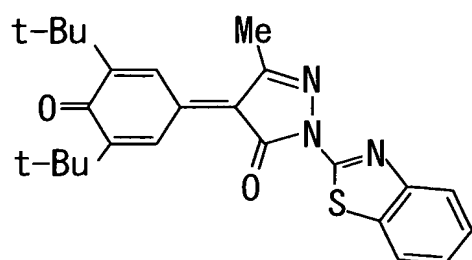
【請求項 18】 下記化学式(30)で表される化合物。

【化 21】



【請求項 19】 下記化学式(31)で表される化合物。

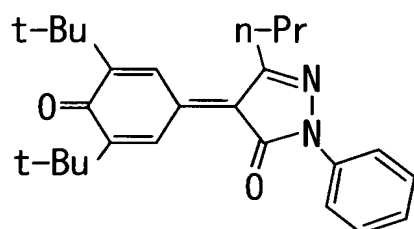
## 【化 2 2】



..... 化学式 (31)

【請求項 20】 下記化学式(32)で表される化合物。

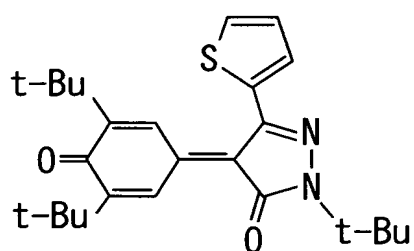
## 【化 2 3】



..... 化学式 (32)

【請求項 21】 下記化学式(33)で表される化合物。

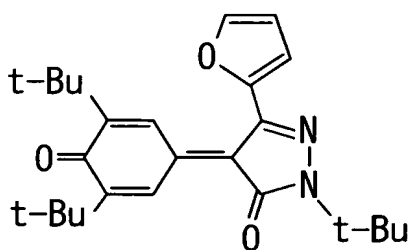
## 【化 2 4】



..... 化学式 (33)

【請求項 22】 下記化学式(34)で表される化合物。

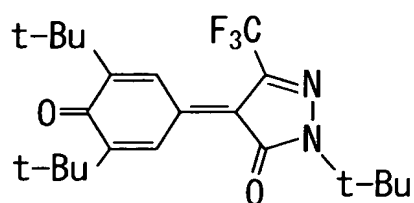
## 【化 2 5】



..... 化学式 (34)

【請求項 23】 下記化学式(35)で表される化合物。

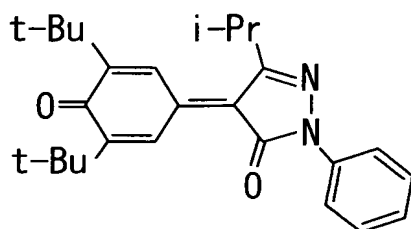
【化 2 6】



..... 化学式 (35)

【請求項 2 4】 下記化学式(36)で表される化合物。

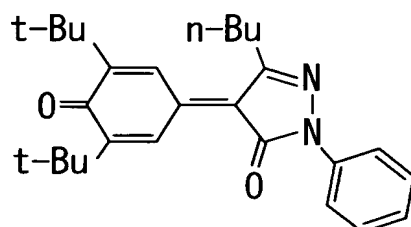
【化 2 7】



..... 化学式 (36)

【請求項 2 5】 下記化学式(37)で表される化合物。

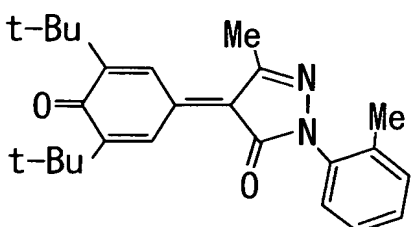
【化 2 8】



..... 化学式 (37)

【請求項 2 6】 下記化学式(38)で表される化合物。

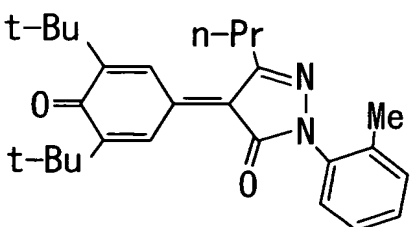
【化 2 9】



..... 化学式 (38)

【請求項 2 7】 下記化学式(39)で表される化合物。

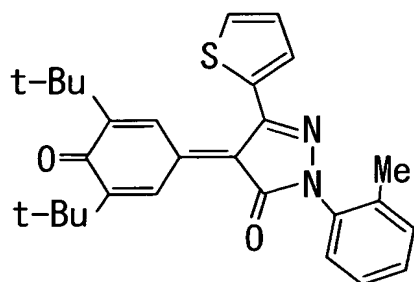
【化 3 0】



..... 化学式 (39)

【請求項 28】 下記化学式(40)で表される化合物。

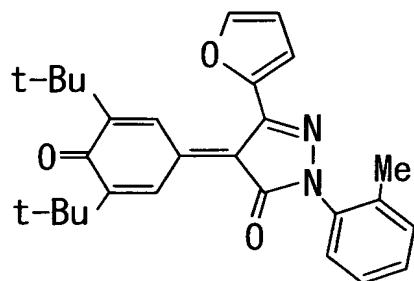
【化 3 1】



..... 化学式 (40)

【請求項 29】 下記化学式(41)で表される化合物。

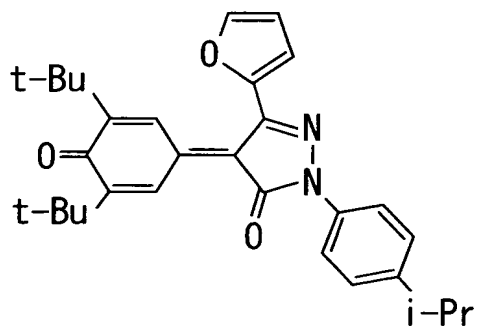
【化 3 2】



..... 化学式 (41)

【請求項 30】 下記化学式(42)で表される化合物。

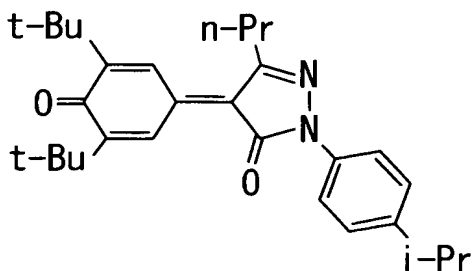
【化 3 3】



..... 化学式 (42)

【請求項 31】 下記化学式(43)で表される化合物。

【化 3 4】



..... 化学式 (43)

【請求項 32】 下記一般式 (17)、

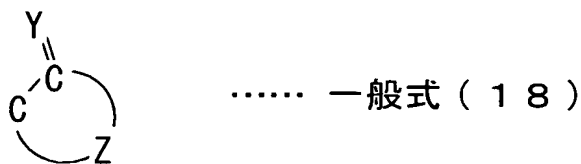
【化 35】



(前記一般式(17)において、置換基 $R_1 \sim R_4$ は、水素原子と、シアノ基と、ニトロ基と、ハロゲン原子と、ヒドロキシ基と、アルキル基と、アリール基と、複素環基と、エステル基と、アルコキシ基と、アラルキル基と、アリル基と、アミド基と、アミノ基と、アシル基と、アルケニル基と、アルキニル基と、カルボキシル基と、カルボニル基と、カルボン酸基とからなる群より選択されるいずれか1種類の置換基である。置換基Xは酸素と、イオウと、 $=C(CN)_2$ とからなる群より選択されるいずれか1種類の置換基である。)

で表されるベンゾキノン化合物と、下記一般式 (18)、

【化 36】



(前記一般式(18)で表される化合物は4員環以上8員環以下の環であって、一般式(18)中の置換基Yは酸素又はイオウのいずれか一方の元素であり、構造Zは環を構成する2以上の原子からなる。)

で表される活性メチレンを有する化合物とを、塩基触媒存在下で反応させ、下記一般式 (1)、

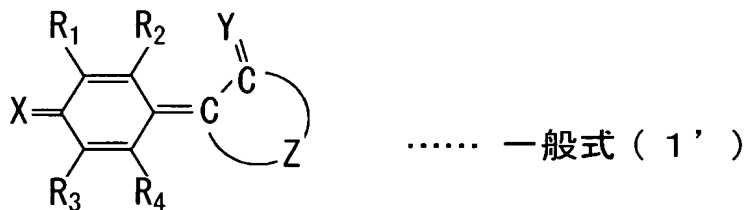
【化 37】





(前記一般式(1)において、置換基 $R_1 \sim R_4$ は、水素原子と、シアノ基と、ニトロ基と、ハロゲン原子と、ヒドロキシ基と、アルキル基と、アリール基と、複素環基と、エステル基と、アルコキシ基と、アラルキル基と、アリル基と、アミド基と、アミノ基と、アシル基と、アルケニル基と、アルキニル基と、カルボキシル基と、カルボニル基と、カルボン酸基とからなる群より選択されるいずれか1種類の置換基である。置換基Xは酸素と、イオウと、 $=C(CN)_2$ からなる群より選択されるいずれか1種類の置換基である。置換基Wは4員環以上8員環以下の環であって、上記一般式(1)を下記一般式(1')に書き換えたときに、

## 【化38】



置換基Yは酸素又はイオウのいずれか一方の元素であり、構造Zは環を構成する2以上の原子からなる。)で表される化合物を製造する化合物製造方法。

【請求項33】 下記一般式(19)、

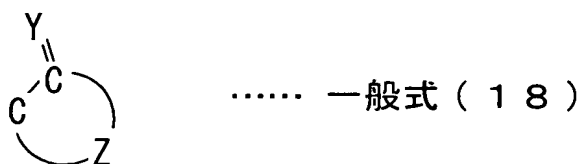
## 【化39】



(前記一般式(19)において、置換基 $R_1$ 、 $R_3$ は、水素原子と、炭素数が1以上6以下のアルキル基と、フェニル基とからなる群より選択されるいずれか1種類の置換基である。置換基Xは酸素と、イオウと、 $=C(CN)_2$ とからなる群より選択されるいずれか1種類の置換基である。)

で表されるベンゾキノン化合物と、下記一般式(18)、

## 【化 4 0】



(前記一般式(18)で表される化合物は4員環以上8員環以下の環であって、一般式(18)中の置換基Yは酸素又はイオウのいずれか一方の元素であり、構造Zは環を構成する2以上の原子からなる。)

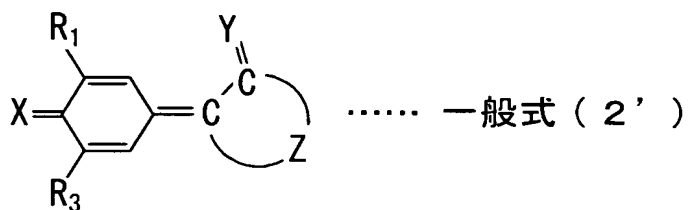
で表される活性メチレンを有する化合物とを、塩基触媒存在下で反応させ、下記一般式(2)、

## 【化 4 1】



(前記一般式(2)において、置換基R<sub>1</sub>、R<sub>3</sub>は、水素原子と、シアノ基と、ニトロ基と、ハロゲン原子と、ヒドロキシ基と、アルキル基と、アリール基と、複素環基と、エステル基と、アルコキシ基と、アラルキル基と、アリル基と、アミド基と、アミノ基と、アシル基と、アルケニル基と、アルキニル基と、カルボキシル基と、カルボニルと、カルボン酸基とからなる群より選択されるいずれか1種類の置換基である。置換基Xは酸素と、イオウと、=C(CN)<sub>2</sub>とからなる群より選択されるいずれか1種類の置換基である。置換基Wは4員環以上8員環以下の環であって、上記一般式(2)を下記一般式(2')に書き換えたときに、

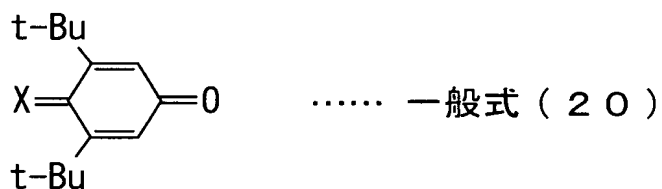
## 【化 4 2】



置換基 Y は酸素又はイオウのいずれか一方の元素であり、構造 Z は環を構成する 2 以上の原子からなる。) で表される化合物を製造する化合物製造方法。

【請求項 34】 下記一般式 (20)、

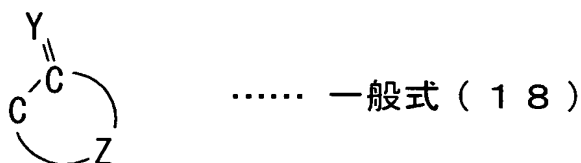
【化 43】



(前記一般式 (20) において、置換基 X は酸素と、イオウと、 $=C(CN)_2$  とからなる群より選択されるいずれか 1 種類の置換基である。)

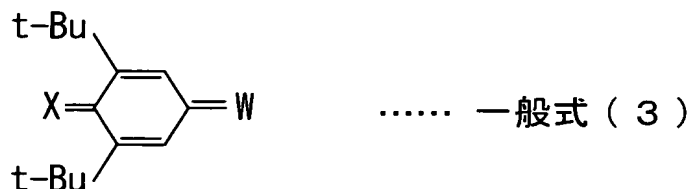
で表されるベンゾキノン化合物と、下記一般式 (18)、

【化 44】



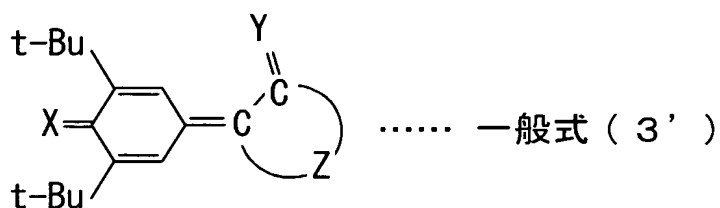
(前記一般式 (18) で表される化合物は 4 員環以上 8 員環以下の環であって、一般式 (18) 中の置換基 Y は酸素又はイオウのいずれか一方の元素であり、構造 Z は環を構成する 2 以上の原子からなる。) で表される活性メチレンを有する化合物とを、塩基触媒存在下で反応させ、下記一般式 (3)、

【化 45】



(前記一般式 (3) において、置換基 X は酸素と、イオウと、 $=C(CN)_2$  とからなる群より選択されるいずれか 1 種類の置換基である。置換基 W は 4 員環以上 8 員環以下の環であって、上記一般式 (3) を下記一般式 (3') に書き換えたときに、

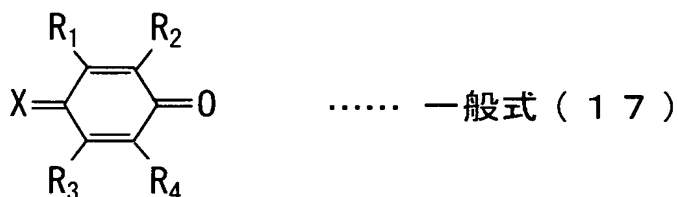
## 【化 4 6】



置換基 Y は酸素又はイオウのいずれか一方の元素であり、構造 Z は環を構成する 2 以上の原子からなる。) で表される化合物を製造する化合物製造方法。

【請求項 35】 下記一般式 ( 17 )、

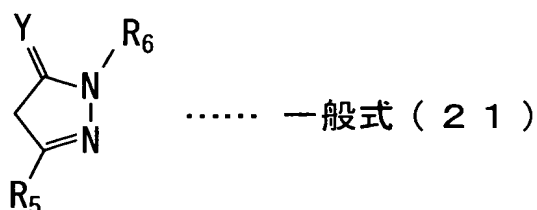
## 【化 4 7】



(前記一般式(17)において、置換基 R<sub>1</sub>~R<sub>4</sub>は、水素原子と、シアノ基と、ニトロ基と、ハロゲン原子と、ヒドロキシ基と、アルキル基と、アリール基と、複素環基と、エステル基と、アルコキシ基と、アラルキル基と、アリル基と、アミド基と、アミノ基と、アシル基と、アルケニル基と、アルキニル基と、カルボキシル基と、カルボニル基と、カルボン酸基とからなる群より選択されるいずれか 1 種類の置換基である。置換基 X は酸素と、イオウと、=C(CN)<sub>2</sub>とからなる群より選択されるいずれか 1 種類の置換基である。)

で表されるベンゾキノン化合物と、下記一般式 ( 21 )、

## 【化 4 8】

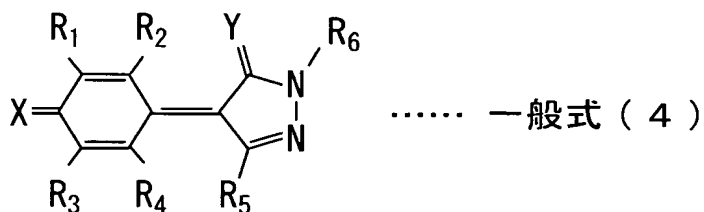


(前記一般式(21)において、置換基 R<sub>5</sub>、R<sub>6</sub>は、水素原子と、シアノ基と、ニトロ基と、ハロゲン原子と、ヒドロキシ基と、アルキル基と、アリール基と、複素環基と、エステル基と、アルコキシ基と、アラルキル基と、アリル基と、アミ

ド基と、アミノ基と、アシル基と、アルケニル基と、アルキニル基と、カルボキシル基と、カルボニル基と、カルボン酸基とからなる群より選択されるいずれか 1 種類の置換基である。置換基 Y は酸素又はイオウのいずれか一方の元素からなる。)

で表される活性メチレンを有する化合物とを、塩基触媒存在下で反応させ、下記一般式 (4)、

【化 49】

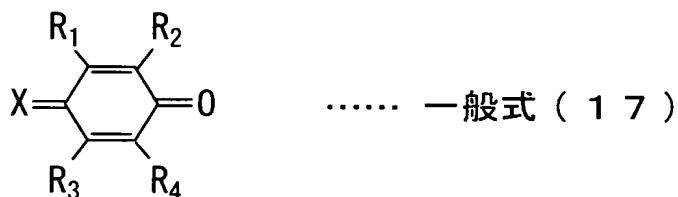


(前記一般式(4)において、置換基 R<sub>1</sub>~R<sub>6</sub>は、水素原子と、シアノ基と、ニトロ基と、ハロゲン原子と、ヒドロキシ基と、アルキル基と、アリール基と、複素環基と、エステル基と、アルコキシ基と、アラルキル基と、アリル基と、アミド基と、アミノ基と、アシル基と、アルケニル基と、アルキニル基と、カルボキシル基と、カルボニル基と、カルボン酸基とからなる群より選択されるいずれか 1 種類の置換基である。置換基 X は酸素と、イオウと、=C(CN)<sub>2</sub>とからなる群より選択されるいずれか 1 種類の置換基であり、置換基 Y は酸素又はイオウのいずれか一方の元素からなる。)

で表される化合物を製造する化合物製造方法。

【請求項 36】 下記一般式 (17)、

【化 50】

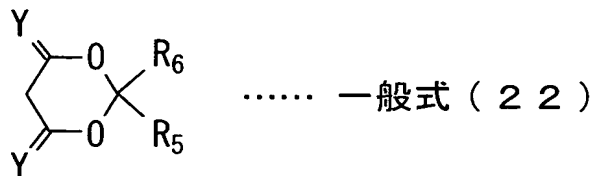


(前記一般式(17)において、置換基 R<sub>1</sub>~R<sub>4</sub>は、水素原子と、シアノ基と、ニトロ基と、ハロゲン原子と、ヒドロキシ基と、アルキル基と、アリール基と、複素環基と、エステル基と、アルコキシ基と、アラルキル基と、アリル基と、アミ

ド基と、アミノ基と、アシル基と、アルケニル基と、アルキニル基と、カルボキシル基と、カルボニル基と、カルボン酸基とからなる群より選択されるいずれか 1 種類の置換基である。置換基 X は酸素と、イオウと、 $=C(CN)_2$  とからなる群より選択されるいずれか 1 種類の置換基である。)

で表されるベンゾキノン化合物と、下記一般式 (22)、

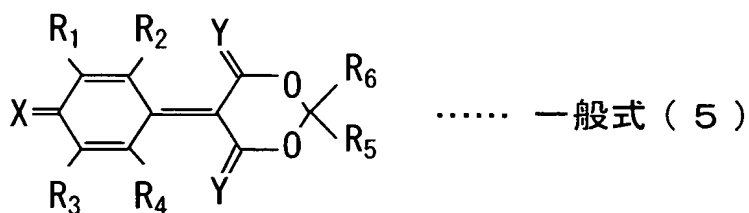
【化 5 1】



(前記一般式 (22) において、置換基  $R_5$ 、 $R_6$  は、水素原子と、シアノ基と、ニトロ基と、ハロゲン原子と、ヒドロキシ基と、アルキル基と、アリール基と、複素環基と、エステル基と、アルコキシ基と、アラルキル基と、アリル基と、アミド基と、アミノ基と、アシル基と、アルケニル基と、アルキニル基と、カルボキシル基と、カルボニル基と、カルボン酸基とからなる群より選択されるいずれか 1 種類の置換基である。置換基 Y は酸素又はイオウのいずれか一方の元素からなる。)

で表される活性メチレンを有する化合物とを、塩基触媒存在下で反応させ、下記一般式 (5)、

【化 5 2】



(前記一般式 (5) において、置換基  $R_1 \sim R_6$  は、水素原子と、シアノ基と、ニトロ基と、ハロゲン原子と、ヒドロキシ基と、アルキル基と、アリール基と、複素環基と、エステル基と、アルコキシ基と、アラルキル基と、アリル基と、アミド基と、アミノ基と、アシル基と、アルケニル基と、アルキニル基と、カルボキシル基と、カルボニル基と、カルボン酸基とからなる群より選択されるいずれか 1

種類の置換基である。置換基 X は酸素と、イオウと、 $=C(CN)_2$  とからなる群より選択されるいずれか 1 種類の置換基であり、置換基 Y は酸素又はイオウのいずれか一方の元素からなる。)

で表される化合物を製造する化合物製造方法。

【請求項 37】 下記一般式 (17)、

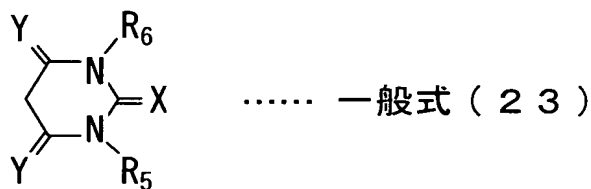
【化 53】



(前記一般式 (17) において、置換基  $R_1 \sim R_4$  は、水素原子と、シアノ基と、ニトロ基と、ハロゲン原子と、ヒドロキシ基と、アルキル基と、アリール基と、複素環基と、エステル基と、アルコキシ基と、アラルキル基と、アリル基と、アミド基と、アミノ基と、アシル基と、アルケニル基と、アルキニル基と、カルボキシル基と、カルボニル基と、カルボン酸基とからなる群より選択されるいずれか 1 種類の置換基である。置換基 X は酸素と、イオウと、 $=C(CN)_2$  とからなる群より選択されるいずれか 1 種類の置換基である。)

で表されるベンゾキノン化合物と、下記一般式 (23)、

【化 54】

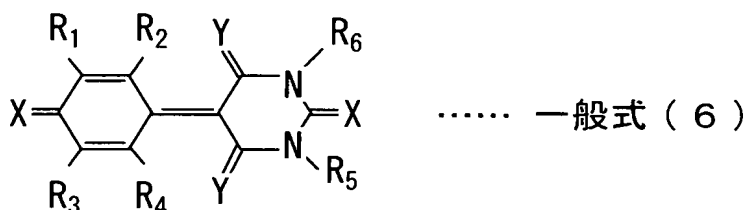


(前記一般式 (23) において、置換基  $R_5$ 、 $R_6$  は、水素原子と、シアノ基と、ニトロ基と、ハロゲン原子と、ヒドロキシ基と、アルキル基と、アリール基と、複素環基と、エステル基と、アルコキシ基と、アラルキル基と、アリル基と、アミド基と、アミノ基と、アシル基と、アルケニル基と、アルキニル基と、カルボキシル基と、カルボニル基と、カルボン酸基とからなる群より選択されるいずれか 1 種類の置換基である。置換基 X は酸素と、イオウと、 $=C(CN)_2$  とからな

る群より選択されるいずれか 1 種類の置換基である。置換基 Y は酸素又はイオウのいずれか一方の元素からなる。)

で表される活性メチレンを有する化合物とを、塩基触媒存在下で反応させ、下記一般式 (6)、

【化 5 5】



(前記一般式 (6) において、置換基  $R_1 \sim R_6$  は、水素原子と、シアノ基と、ニトロ基と、ハロゲン原子と、ヒドロキシ基と、アルキル基と、アリール基と、複素環基と、エステル基と、アルコキシ基と、アラルキル基と、アリル基と、アミド基と、アミノ基と、アシル基と、アルケニル基と、アルキニル基と、カルボキシル基と、カルボニル基と、カルボン酸基とからなる群より選択されるいずれか 1 種類の置換基である。置換基 X は酸素と、イオウと、 $=C(CN)_2$  とからなる群より選択されるいずれか 1 種類の置換基であり、置換基 Y は酸素又はイオウのいずれか一方の元素からなる。)

で表される化合物を製造する化合物製造方法。

【請求項 38】水と、アルコールと、飽和脂肪族炭化水素系溶媒のうち、いずれか 1 種の溶媒、又は、2 種以上の溶媒を混合してなる溶媒と、前記塩基触媒との存在下で、前記ベンゾキノン化合物と、前記活性メチレンを有する化合物とを反応させる請求項 32 乃至請求項 37 のいずれか 1 項記載の化合物製造方法。

【請求項 39】前記一般式 (1) ~ (6) で表される化合物 1 g を溶解するに 50 ml 以上を必要とする溶媒と、前記塩基触媒との存在下で、前記ベンゾキノン化合物と、前記活性メチレンを有する化合物とを反応させる請求項 32 乃至請求項 37 のいずれか 1 項記載の化合物製造方法。

【請求項 40】電荷移動物質として、下記一般式 (1)、

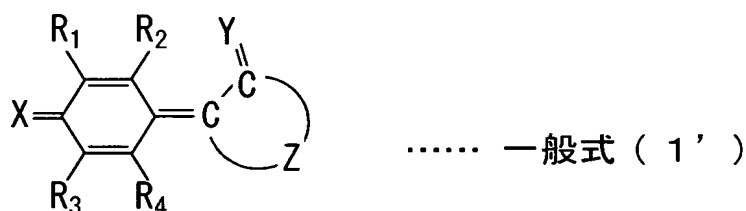


## 【化 5 6】



(前記一般式(1)において、置換基 $R_1 \sim R_4$ は、水素原子と、シアノ基と、ニトロ基と、ハロゲン原子と、ヒドロキシ基と、アルキル基と、アリール基と、複素環基と、エステル基と、アルコキシ基と、アラルキル基と、アリル基と、アミド基と、アミノ基と、アシル基と、アルケニル基と、アルキニル基と、カルボキシ基と、カルボニル基と、カルボン酸基とからなる群より選択されるいずれか1種類の置換基である。置換基Xは酸素と、イオウと、 $=C(CN)_2$ からなる群より選択されるいずれか一種類の置換基である。置換基Wは4員環以上8員環以下の環であって、上記一般式(1)を下記一般式(1')に書き換えたときに、

## 【化 5 7】



置換基Yは酸素又はイオウのいずれか一方の元素であり、構造Zは環を構成する2以上の原子からなる。) )

で表される化合物を樹脂中に含有することを特徴とする電子移動剤。

【請求項 4 1】電荷移動物質として下記一般式(2)、

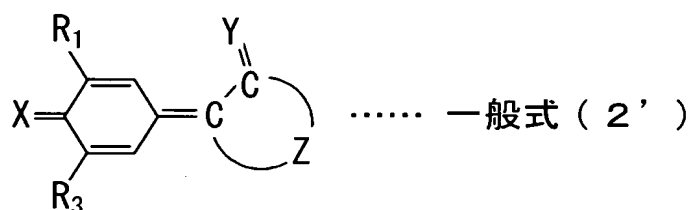
## 【化 5 8】



(前記一般式(2)において、置換基 $R_1$ 、 $R_3$ は、水素原子と、シアノ基と、ニトロ基と、ハロゲン原子と、ヒドロキシ基と、アルキル基と、アリール基と、複

素環基と、エステル基と、アルコキシ基と、アラルキル基と、アリル基と、アミド基と、アミノ基と、アシル基と、アルケニル基と、アルキニル基と、カルボキシル基と、カルボニルと、カルボン酸基とからなる群より選択されるいずれか1種類の置換基である。置換基Xは酸素と、イオウと、 $=C(CN)_2$ とからなる群より選択されるいずれか1種類の置換基である。置換基Wは4員環以上8員環以下の環であって、上記一般式(2)を下記一般式(2')に書き換えたときに、

【化59】

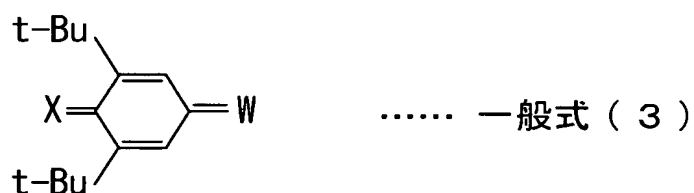


置換基Yは酸素又はイオウのいずれか一方の元素であり、構造Zは環を構成する2以上の原子からなる。)

で表される化合物を樹脂中に含有することを特徴とする電子移動剤。

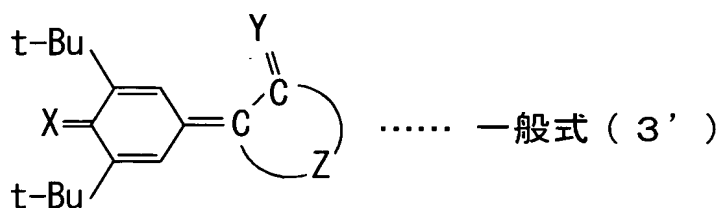
【請求項42】電荷移動物質として下記一般式(3)、

【化60】



(前記一般式(3)において、置換基Xは酸素と、イオウと、 $=C(CN)_2$ とからなる群より選択されるいずれか1種類の置換基である。置換基Wは4員環以上8員環以下の環であって、上記一般式(3)を下記一般式(3')に書き換えたときに、

## 【化 6 1】



置換基 Y は酸素又はイオウのいずれか一方の元素であり、構造 Z は環を構成する 2 以上の原子からなる。）

で表される化合物を樹脂中に含有することを特徴とする電子移動剤。

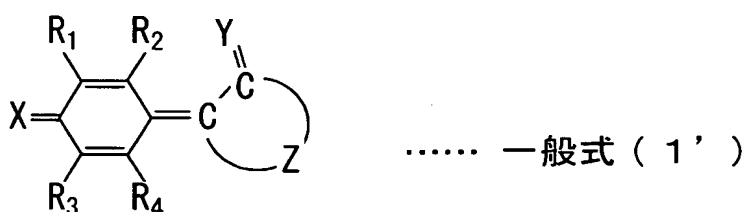
【請求項 4 3】導電性基体上に少なくとも感光層が設けられた電子写真感光体であって、前記感光層中に電荷移動物質として下記一般式 ( 1 )、

## 【化 6 2】



(前記一般式 ( 1 ) において、置換基  $R_1 \sim R_4$  は、水素原子と、シアノ基と、ニトロ基と、ハロゲン原子と、ヒドロキシ基と、アルキル基と、アリール基と、複素環基と、エステル基と、アルコキシ基と、アラルキル基と、アリル基と、アミド基と、アミノ基と、アシル基と、アルケニル基と、アルキニル基と、カルボキシ基と、カルボニル基と、カルボン酸基とからなる群より選択されるいずれか 1 種類の置換基である。置換基 X は酸素と、イオウと、 $=C(CN)_2$  からなる群より選択されるいずれか 1 種類の置換基である。置換基 W は 4 員環以上 8 員環以下の環であって、上記一般式 ( 1 ) を下記一般式 ( 1' ) に書き換えたときに、

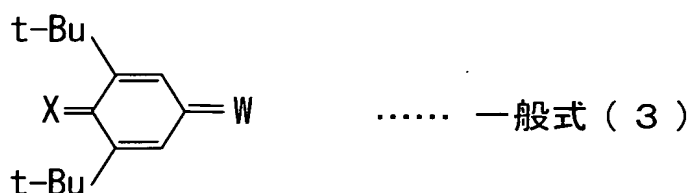
## 【化 6 3】



置換基 Y は酸素又はイオウのいずれか一方の元素であり、構造 Z は環を構成する

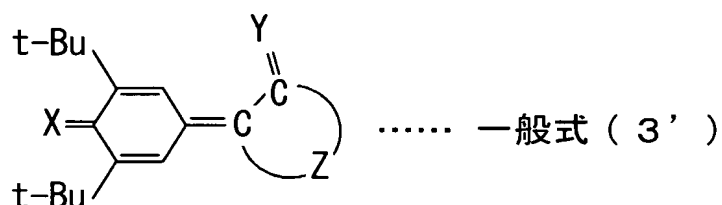


## 【化 6 6】



(前記一般式(3)において、置換基Xは酸素と、イオウと、 $=C(CN)_2$ とからなる群より選択されるいずれか1種類の置換基である。置換基Wは4員環以上8員環以下の環であって、上記一般式(3)を下記一般式(3')に書き換えたときに、

## 【化 6 7】



置換基Yは酸素又はイオウのいずれか一方の元素であり、構造Zは環を構成する2以上の原子からなる。)

で表される化合物を含有する電子写真感光体。

【請求項 4 6】 一对の電極間に、少なくとも発光可能な有機薄膜が配置された有機エレクトロルミネッセンス素子であって、

前記有機薄膜中には、下記一般式(1)、

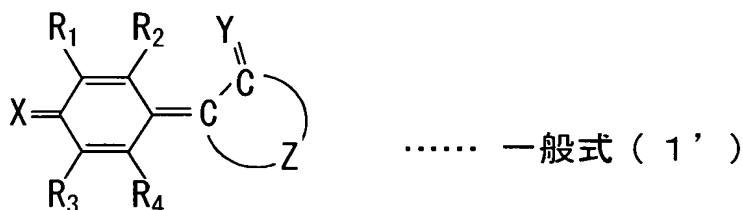
## 【化 6 8】



(前記一般式(1)において、置換基 $R_1 \sim R_4$ は、水素原子と、シアノ基と、ニトロ基と、ハロゲン原子と、ヒドロキシ基と、アルキル基と、アリール基と、複素環基と、エステル基と、アルコキシ基と、アラルキル基と、アリル基と、アミド基と、アミノ基と、アシル基と、アルケニル基と、アルキニル基と、カルボキシ

ル基と、カルボニル基と、カルボン酸基とからなる群より選択されるいずれか 1 種類の置換基である。置換基 X は酸素と、イオウと、 $=C(CN)_2$  からなる群より選択されるいずれか一種類の置換基である。置換基 W は 4 員環以上 8 員環以下の環であって、上記一般式 (1) を下記一般式 (1') に書き換えたときに、

【化 69】



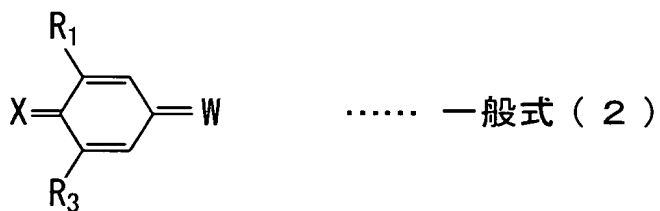
置換基 Y は酸素又はイオウのいずれか一方の元素であり、構造 Z は環を構成する 2 以上の原子からなる。) )

で表される化合物が含有された事の特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項 47】 一对の電極間に、少なくとも発光可能な有機薄膜が配置された有機エレクトロルミネッセンス素子であって、

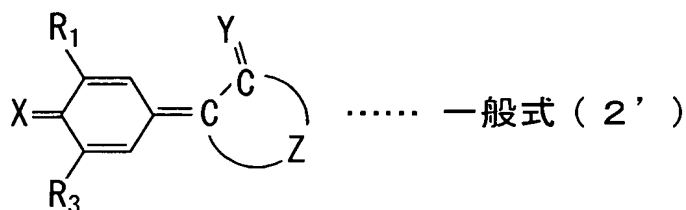
前記有機薄膜中には、下記一般式 (2)、

【化 70】



(前記一般式 (2) において、置換基  $R_1$ 、 $R_3$  は、水素原子と、シアノ基と、ニトロ基と、ハロゲン原子と、ヒドロキシ基と、アルキル基と、アリール基と、複素環基と、エステル基と、アルコキシ基と、アラルキル基と、アリル基と、アミド基と、アミノ基と、アシル基と、アルケニル基と、アルキニル基と、カルボキシル基と、カルボニルと、カルボン酸基とからなる群より選択されるいずれか 1 種類の置換基である。置換基 X は酸素と、イオウと、 $=C(CN)_2$  とからなる群より選択されるいずれか 1 種類の置換基である。置換基 W は 4 員環以上 8 員環以下の環であって、上記一般式 (2) を下記一般式 (2') に書き換えたときに

## 【化 7 1】



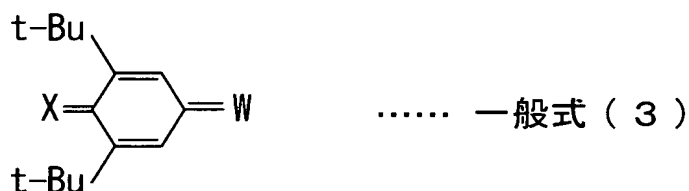
置換基  $Y$  は酸素又はイオウのいずれか一方の元素であり、構造  $Z$  は環を構成する 2 以上の原子からなる。)

で表される化合物が含有された事の特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項 4 8】 一對の電極間に、少なくとも発光可能な有機薄膜が配置された有機エレクトロルミネッセンス素子であって、

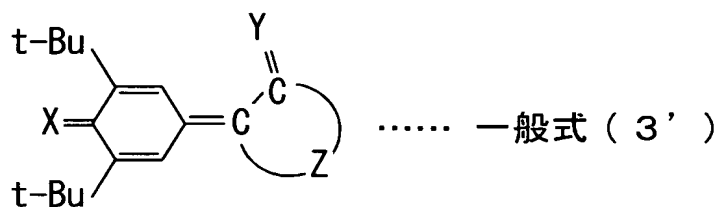
前記有機薄膜中には、下記一般式 (3)、

## 【化 7 2】



(前記一般式 (3) において、置換基  $X$  は酸素と、イオウと、 $=C(CN)_2$  とからなる群より選択されるいずれか 1 種類の置換基である。置換基  $W$  は 4 員環以上 8 員環以下の環であって、上記一般式 (3) を下記一般式 (3') に書き換えたときに、

## 【化 7 3】



置換基  $Y$  は酸素又はイオウのいずれか一方の元素であり、構造  $Z$  は環を構成する 2 以上の原子からなる。)

で表される化合物が含有された事の特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子。

【発明の詳細な説明】

【0 0 0 1】

【発明の属する技術分野】

本発明は、電子移動性材料を用いる技術分野にかかり、特に、新規な電子移動化合物、その製造方法、それを含有する電子移動剤およびそれらを含有する電子写真感光体及び有機エレクトロルミネッセンス素子に関する。

【0 0 0 2】

【従来の技術】

複写機やレーザープリンター等の電子写真機器は、電子写真感光体を有しているが、複写機やレーザープリンター等の普及当初には、電子写真感光体中の感光層には、セレン、セレン-テルル、セレン-砒素、アモルファスシリコン等の無機系の材料で構成された無機薄膜が用いられていた。

【0 0 0 3】

しかしながら、近年では、低価格で環境汚染の少ない電子写真感光体が要求されており、そのため従来用いられていた無機薄膜の感光層に代え、有機薄膜を有する電子写真感光体が主流になりつつある。そのような有機薄膜から成る感光層を構造で分類した場合、単層分散型の感光層と機能分離型の感光層とに大別できる。

【0 0 0 4】

単層分散型の感光層は、電荷移動物質の媒体中に電荷発生物質を分散させた単層膜からなり、その単層膜一層で電荷発生機能と電荷移動機能の両方の機能を持たせている。他方、機能分離型感光層は、電荷発生層(CGL: Charge Generation Layer)と電荷移動層(CTL: Charge Transfer Layer)とが積層された多層膜で構成されており、電荷発生層に電荷を発生させる機能を持たせ、電荷移動層に発生した電荷を移動させる機能を持たせている。

【0 0 0 5】



現在では、両方の型の感光層が実用化されているが、いずれの型についても、感度を向上させるために、高移動度の電荷移動物質が不可欠である。

他方、有機感光層を帯電型で分類した場合、正帯電型感光層と負帯電型感光層の2種類に分けられる。現在知られている電荷移動物質のうち、移動度が高く、実用に共せられているものはホール移動性のものがほとんどであり、そのため、市販されている電子写真機器には、負帯電型感光層を有する感光体が使用されている。

#### 【0006】

ところが、感光層を負帯電させるために利用されるコロナ放電現象は、放電に伴って多量のオゾンが発生し、室内環境が汚染されたり、電子写真感光体の劣化が早まる等、種々の不都合が生じている。

負帯電の際の不都合については、従来技術の電子写真機器にも対策が試みられており、オゾン捕捉フィルターの付加や、オゾンが発生させない特殊な帯電方式の採用等が検討されているが、装置が大型化したり、電子写真プロセスが複雑になる等、新たな問題が生じてしまい解決には到っていない。

このような状況を打開するために、市場ではオゾン発生が少ない正帯電型の感光体が要求されており、そのためには正帯電型感光層に使用できる高移動度の電子移動物質の開発が必要となっている。

#### 【0007】

また、プリンター機器のカラー化においては負帯電型感光体のほうが、利用できるトナーの面で有利である。そして負帯電型感光体の感光層を単層型とすれば、塗工工程が短いので低コストで生産できる。しかしそのためには、さらに高移動度の電子移動物質が必要となるが、そのような特性を得られる電子移動度を持った物質は存在しなかった。

#### 【0008】

このように移動度の高い電子移動物質は正帯電感光体ばかりでなく、負帯電感光体でも重要であり従来より精力的な研究が行われていた。そして現在のところ、そのような正帯電型感光体に使用できる電子移動物質として、トリニトロフルオレノン (TNF)、テトラシアノエチレン、テトラシアノキノジメタン (TC

NQ)、キノン、ジフェノキノン、ナフトキノン、アントラキノン及びこれらの誘導体等が見出されている。しかしながら、これらの電子移動物質のほとんどはバインダー樹脂との相溶性が悪く、感光層中に高濃度で均一に分散させることができない。そのため含有量が不足し、電気特性を満足させることができない。

#### 【0009】

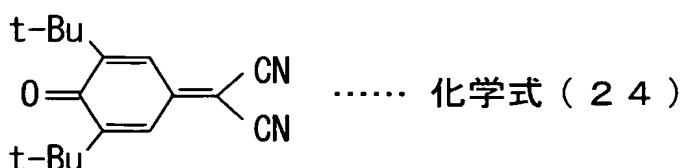
その中でも例外的にジフェノキノン化合物は樹脂相溶性が良く、電子移動性が高いことが知られている。その一方で分子の共役系が長いために強く着色し、感光層を形成した場合、本来は電荷発生物質に届くべき光を吸収してしまい、感度を低下させてしまう。また分子骨格が対称構造であるため電氣的に安定なラジカルを生成してしまい、電氣的なトラップを形成して低電界下で電子移動せず、有機エレクトロルミネッセンス素子では発光効率が悪く十分な輝度が得られなくなったり、感光体の感光層中において残留電位が高くなってしまう問題があった。

#### 【0010】

低電界下で電子移動度が低下する問題を解決した電子移動物質として、特開平9-34141に記載される下記化学式(24)、

#### 【0011】

#### 【化74】



#### 【0012】

の化合物について検討した。上記化合物は分子骨格内の酸素原子とジシアノメチレン基の間に二重結合を三つ介する共役系があり、共役系が短いため着色性は弱く光を吸収しにくい。

#### 【0013】

またキノン骨格の片側がジシアノメチレン基になっているため電子移動時に生成したラジカルの寿命が短く、低電界でもトラップになり難い。しかし共役系が短く分子内の電子移動距離が短いことからジフェノキノン化合物に比べて電子が

分子内を移動しにくい。

上記化合物を用いた電子写真感光体では、市場における負帯電型電子写真感光体の感度と残留電位には及ばないのが実情であった。

#### 【0014】

このように電子移動物質として実用化するためには、化学構造中の共役系を短くして着色性を弱くすると必要があると同時に、分子骨格を大きくして共役系を長くし、電子が分子内を移動しやすくする必要があり、このような相反する課題を解決した上に、安定なラジカルを形成しない分子構造を考案する研究が望まれていた。

#### 【0015】

##### 【発明が解決しようとする課題】

本発明は、このような従来の技術の課題を解決するためになされたもので、感光層中に高濃度で分散でき、かつ、電子移動度が速い新規で有用な電子移動物質を提供することと、感度と残留電位の優れた電子写真感光体と発光効率の高い有機エレクトロルミネッセンス素子を提供することとを目的とするものである。

#### 【0016】

##### 【課題を解決するための手段】

本発明者らは、前記課題を解決すべく鋭意研究を重ねた結果、キノン環と活性メチレンを有する環状構造が二重結合で結ばれている新規な分子骨格を持つ化合物及びその製造方法と、新規な電子移動物質と、電子移動物質を含有する電子写真感光体並びに有機エレクトロルミネッセンス素子とを提供することができることを見出し、本発明を完成するに至った。

#### 【0017】

本発明はかかる知見に基づいてなされたもので、請求項1記載の発明は、下記一般式(1)で表される化合物である。

#### 【0018】

## 【化75】

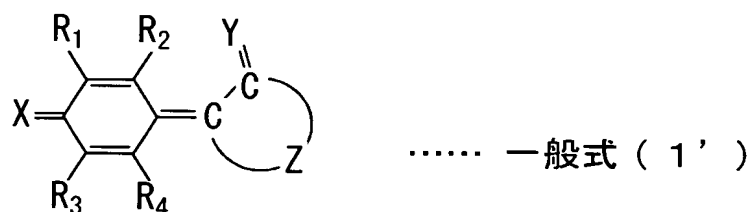


## 【0019】

(前記一般式(1)において、置換基 $R_1 \sim R_4$ は、水素原子と、シアノ基と、ニトロ基と、ハロゲン原子と、ヒドロキシ基と、アルキル基と、アリール基と、複素環基と、エステル基と、アルコキシ基と、アラルキル基と、アリル基と、アミド基と、アミノ基と、アシル基と、アルケニル基と、アルキニル基と、カルボキシ基と、カルボニル基と、カルボン酸基とからなる群より選択されるいずれか1種類の置換基である。置換基Xは酸素と、イオウと、 $=C(CN)_2$ からなる群より選択されるいずれか1種類の置換基である。置換基Wは4員環以上8員環以下の環であって、上記一般式(1)を下記一般式(1')に書き換えたときに、

## 【0020】

## 【化76】



## 【0021】

置換基Yは酸素又はイオウのいずれか一方の元素であり、構造Zは環を構成する2以上の原子からなる。)

Wで示す環は、強い酸性を示し電子受容性が高い構造を有している。そこで、本発明者等はWで示す環と、一般的に電子受容性が強いと知られているキノン環とを二重結合で結んだ新規な分子骨格を設計した。この分子骨格においてジフェノキノンのように安定なラジカルを生成しないために、分子骨格そのものの双極子モーメントが大きくなければならない。

## 【0022】

分子骨格の双極子モーメントは分子軌道法で計算すると明瞭に比較できる。具体的には置換基を有しない分子骨格をMOPAC/AM1で計算したDipole Moment (debye)の値が0.001以上、好ましくは0.01以上、特に好ましくは0.1以上であるとラジカルの寿命が短いために、電氣的なトラップを形成しにくく、低電界でも電子移動が起きるようになるとともに、高電界下では電子移動度が早くしかも移動効率も良くなる。

#### 【0023】

この当該化合物は6員環とWで示す環の2つの環構造が結合しているため、上記式(24)の化合物に比べて分子骨格が大きくされており、分子内の電子移動距離が長いことから電子が分子内を移動しやすく、高い電子移動性を示す。

#### 【0024】

また、ジフェノキノン化合物に比べて共役構造の骨格が非対称なので着色性が弱く光の吸収を起こしにくい。その上、キノン環の片側にWで示す環が結合していることより、分子構造が非対称となるため樹脂相溶性が高く、樹脂中に高濃度で均一に分散できる。しかも、これらの機能は置換基の組み合わせによって任意に変えることが容易であり、これによって樹脂相溶性を最適化したり電子移動速度や電子移動量を制御することが可能になる。

#### 【0025】

また請求項2記載の発明のように、下記一般式(2)で表される化合物が好ましい。

#### 【0026】

#### 【化77】



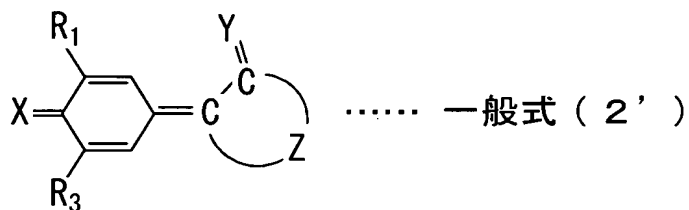
#### 【0027】

(前記一般式(2)において、置換基R<sub>1</sub>、R<sub>3</sub>は、水素原子と、シアノ基と、ニトロ基と、ハロゲン原子と、ヒドロキシ基と、アルキル基と、アリール基と、複

素環基と、エステル基と、アルコキシ基と、アラルキル基と、アリル基と、アミド基と、アミノ基と、アシル基と、アルケニル基と、アルキニル基と、カルボキシル基と、カルボニルと、カルボン酸基とからなる群より選択されるいずれか 1 種類の置換基である。置換基 X は酸素と、イオウと、 $=C(CN)_2$  とからなる群より選択されるいずれか 1 種類の置換基である。置換基 W は 4 員環以上 8 員環以下の環であって、上記一般式 (2) を下記一般式 (2') に書き換えたときに

【0028】

【化78】



【0029】

置換基 Y は酸素又はイオウのいずれか一方の元素であり、構造 Z は環を構成する 2 以上の原子からなる。)

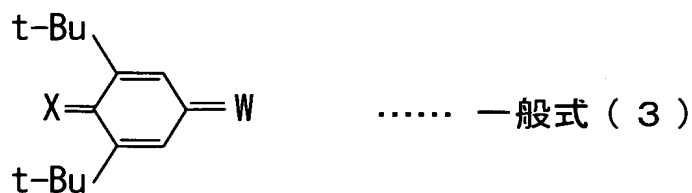
置換基  $R_1$ 、 $R_3$  に、少なくとも一つ炭素数 1 ~ 6 のアルキル基、又はフェニル基を導入することにより、分子骨格に電子を押し出す効果があり分子内の分極を高め電子移動性が高くなる。そしてそれらの置換基で樹脂に対して相溶性のよいものを組み合わせることもできる。

【0030】

さらに請求項 3 記載の発明のように、下記一般式 (3) で表される化合物が特に好ましい。

【0031】

【化79】

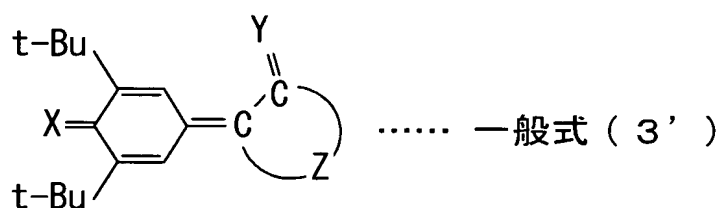


## 【0032】

(前記一般式(3)において、置換基Xは酸素と、イオウと、 $=C(CN)_2$ とからなる群より選択されるいずれか1種類の置換基である。置換基Wは4員環以上8員環以下の環であって、上記一般式(3)を下記一般式(3')に書き換えたときに、

## 【0033】

## 【化80】



## 【0034】

置換基Yは酸素又はイオウのいずれか一方の元素であり、構造Zは環を構成する2以上の原子からなる。)

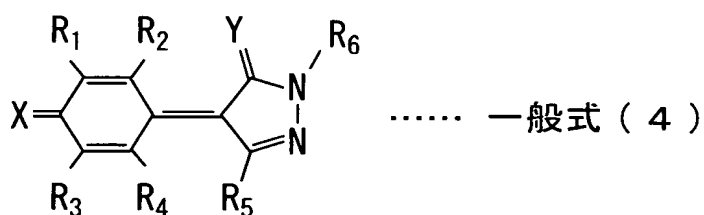
キノン環にかさ高い置換基であるt-Bu基を導入することにより、樹脂相溶性が高いとともに分子骨格に電子を押し出す効果があり、分子内の分極を高め、極めて電子移動性の高い化合物を発明するに至った。

## 【0035】

請求項4記載の発明は下記一般式(4)で表される化合物である。

## 【0036】

## 【化81】



## 【0037】

(前記一般式(4)において、置換基 $R_1 \sim R_6$ は、水素原子と、シアノ基と、ニトロ基と、ハロゲン原子と、ヒドロキシ基と、アルキル基と、アリール基と、複素環基と、エステル基と、アルコキシ基と、アラルキル基と、アリル基と、アミド

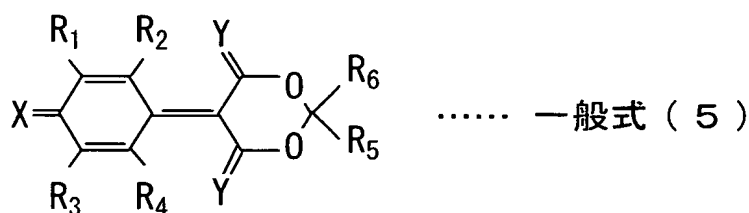
基と、アミノ基と、アシル基と、アルケニル基と、アルキニル基と、カルボキシ  
ル基と、カルボニル基と、カルボン酸基とからなる群より選択されるいずれか 1  
種類の置換基である。置換基 X は酸素と、イオウと、 $=C(CN)_2$  とからなる  
群より選択されるいずれか 1 種類の置換基であり、置換基 Y は酸素又はイオウの  
いずれか一方の元素からなる。) )

上記一般式 (4) 中の置換基  $R_5$  に芳香族  $6\pi$  電子系のフェニル基、チエニル  
基、又はフリル基を導入することにより、分子骨格を安定化させることができる  
。

請求項 5 記載の発明は下記一般式 (5) で表される化合物である。

【0038】

【化 8 2】



【0039】

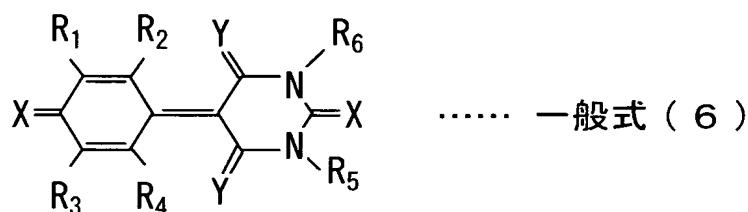
(前記一般式 (5) において、置換基  $R_1 \sim R_6$  は、水素原子と、シアノ基と、ニト  
ロ基と、ハロゲン原子と、ヒドロキシ基と、アルキル基と、アリール基と、複素  
環基と、エステル基と、アルコキシ基と、アラルキル基と、アリル基と、アミド  
基と、アミノ基と、アシル基と、アルケニル基と、アルキニル基と、カルボキシ  
ル基と、カルボニル基と、カルボン酸基とからなる群より選択されるいずれか 1  
種類の置換基である。置換基 X は酸素と、イオウと、 $=C(CN)_2$  とからなる  
群より選択されるいずれか 1 種類の置換基であり、置換基 Y は酸素又はイオウの  
いずれか一方の元素からなる。) )

請求項 6 記載の発明は下記一般式 (6) で表される化合物である。

【0040】



## 【化 8 3】



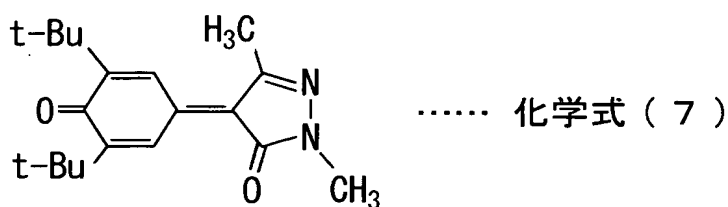
## 【0041】

(前記一般式(6)において、置換基 $R_1 \sim R_6$ は、水素原子と、シアノ基と、ニトロ基と、ハロゲン原子と、ヒドロキシ基と、アルキル基と、アリール基と、複素環基と、エステル基と、アルコキシ基と、アラルキル基と、アリル基と、アミド基と、アミノ基と、アシル基と、アルケニル基と、アルキニル基と、カルボキシル基と、カルボニル基と、カルボン酸基とからなる群より選択されるいずれか1種類の置換基である。置換基Xは酸素と、イオウと、 $=C(CN)_2$ とからなる群より選択されるいずれか1種類の置換基であり、置換基Yは酸素又はイオウのいずれか一方の元素からなる。)

請求項7記載の発明は、下記化学式(7)で表される化合物である。

## 【0042】

## 【化 8 4】

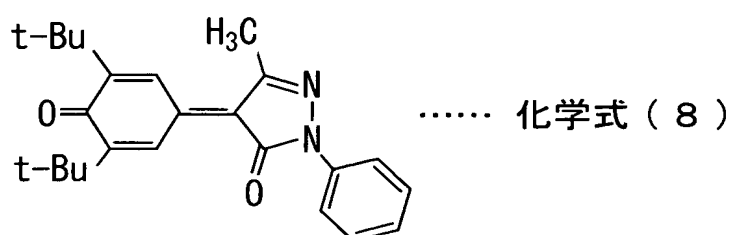


## 【0043】

請求項8記載の発明は、下記化学式(8)で表される化合物である。

## 【0044】

## 【化 8 5】

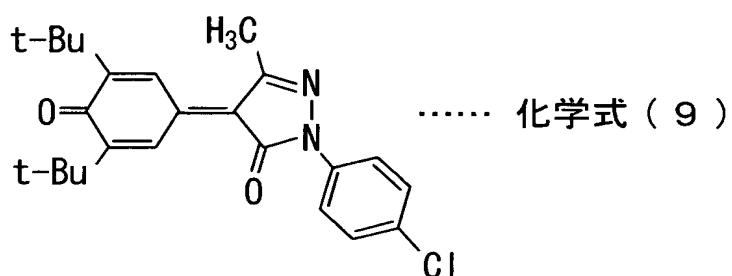


## 【0045】

請求項 9 記載の発明は、下記化学式 ( 9 ) で表される化合物である。

## 【0046】

## 【化 8 6】

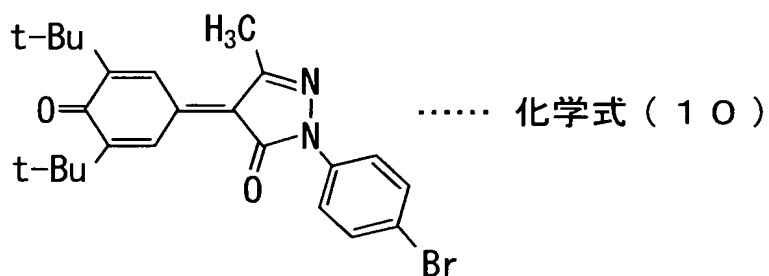


## 【0047】

請求項 10 記載の発明は、下記化学式 ( 10 ) で表される化合物である。

## 【0048】

## 【化 8 7】

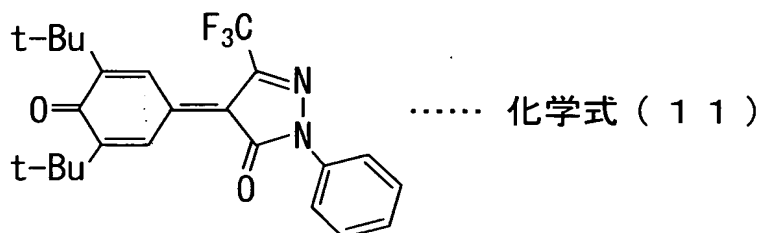


## 【0049】

請求項 11 記載の発明は、下記化学式 ( 11 ) で表される化合物である。

## 【0050】

【化 88】

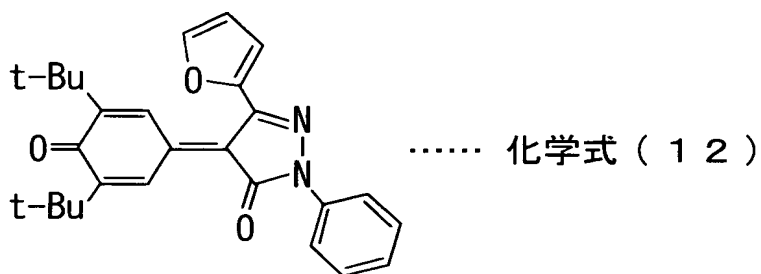


【0051】

請求項 12 記載の発明は、下記化学式(12)で表される化合物である。

【0052】

【化 89】

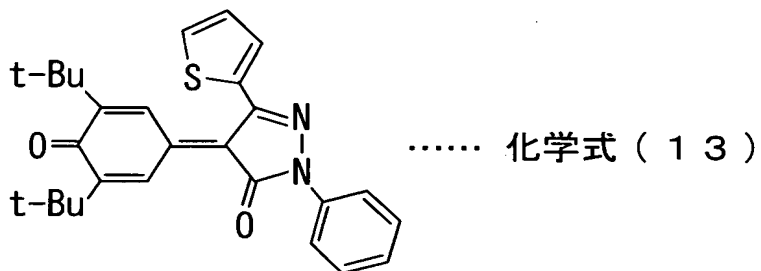


【0053】

請求項 13 記載の発明は、下記化学式(13)で表される化合物である。

【0054】

【化 90】

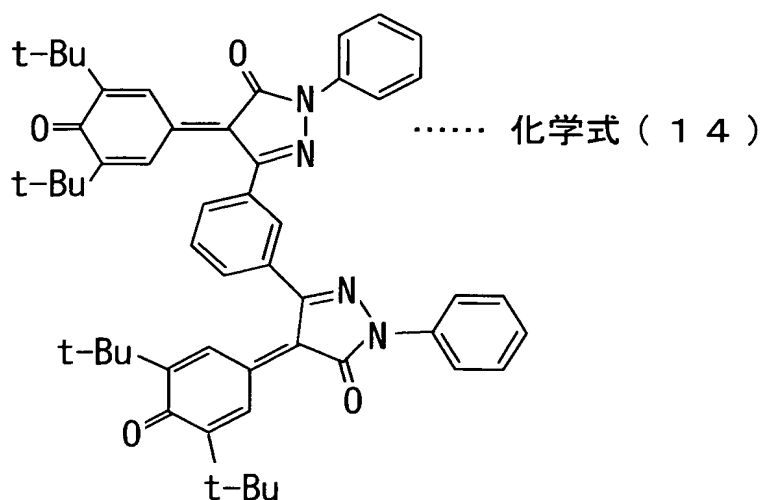


【0055】

請求項 14 記載の発明は、下記化学式(14)で表される化合物である。

【0056】

## 【化 9 1】

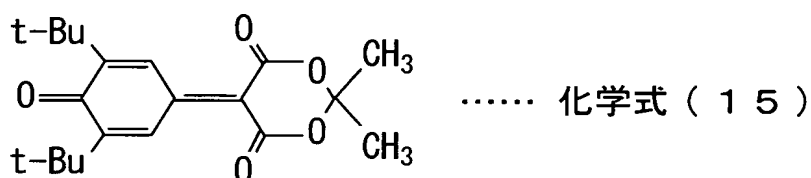


## 【0057】

請求項 15 記載の発明は、下記化学式(15)で表される化合物である。

## 【0058】

## 【化 9 2】

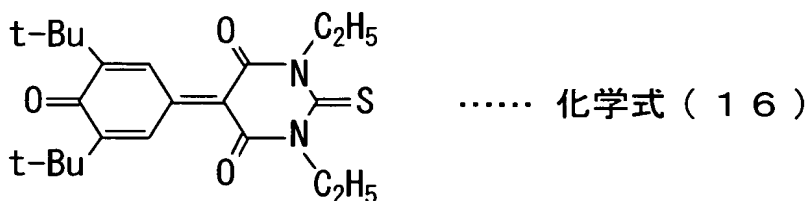


## 【0059】

請求項 16 記載の発明は、下記化学式(16)で表される化合物である。

## 【0060】

## 【化 9 3】

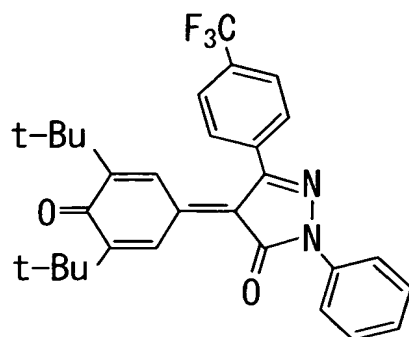


## 【0061】

請求項 17 記載の発明は、下記化学式 ( 2 9 ) で表される化合物である。

## 【0062】

【化 9 4】



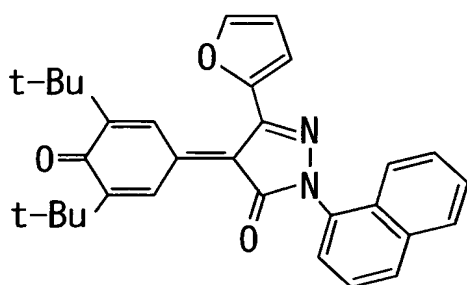
..... 化学式 (29)

【0063】

請求項 18 記載の発明は、下記化学式 (30) で表される化合物である。

【0064】

【化 9 5】



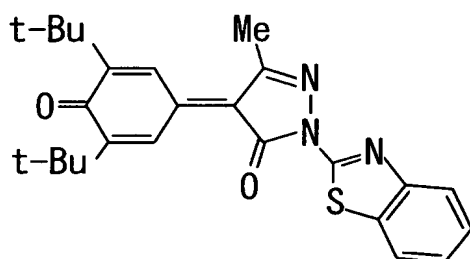
..... 化学式 (30)

【0065】

請求項 19 記載の発明は、下記化学式 (31) で表される化合物である。

【0066】

【化 9 6】



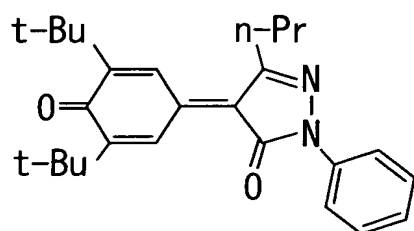
..... 化学式 (31)

【0067】

請求項 20 記載の発明は、下記化学式 (32) で表される化合物である。

【0068】

【化 97】



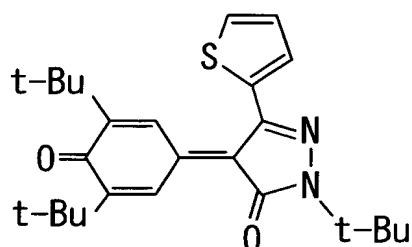
..... 化学式 (32)

【0069】

請求項 21 記載の発明は、下記化学式 (33) で表される化合物である。

【0070】

【化 98】



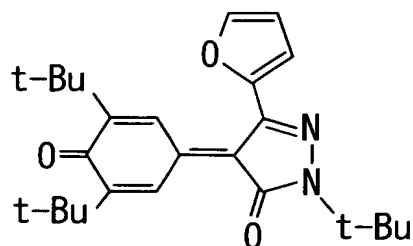
..... 化学式 (33)

【0071】

請求項 22 記載の発明は、下記化学式 (34) で表される化合物である。

【0072】

【化 99】



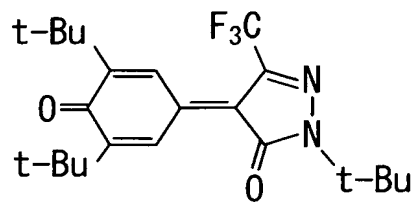
..... 化学式 (34)

【0073】

請求項 23 記載の発明は、下記化学式 (35) で表される化合物である。

【0074】

【化100】



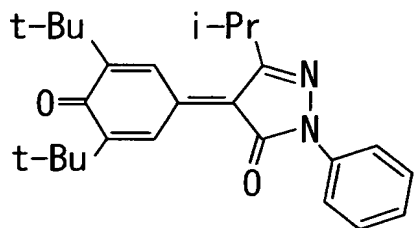
..... 化学式 (35)

【0075】

請求項 24 記載の発明は、下記化学式 (36) で表される化合物である。

【0076】

【化101】



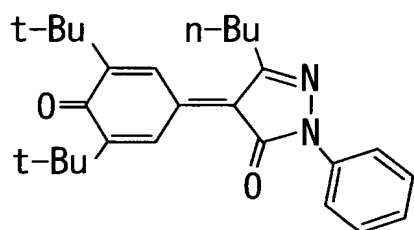
..... 化学式 (36)

【0077】

請求項 25 記載の発明は、下記化学式 (37) で表される化合物である。

【0078】

【化102】



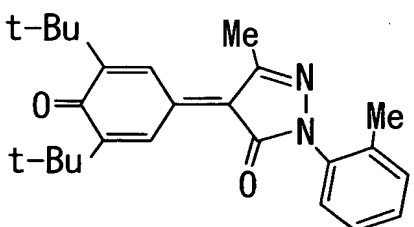
..... 化学式 (37)

【0079】

請求項 26 記載の発明は、下記化学式 (38) で表される化合物である。

【0080】

【化103】



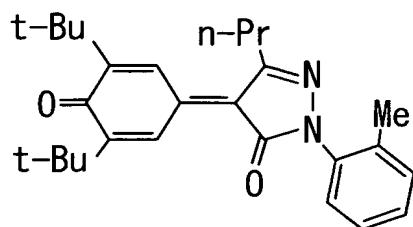
..... 化学式 (38)

【0081】

請求項 27 記載の発明は、下記化学式 (39) で表される化合物である。

【0082】

【化104】



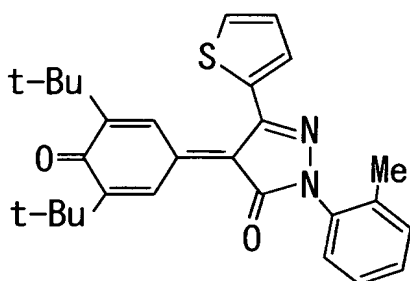
..... 化学式 (39)

【0083】

請求項 28 記載の発明は、下記化学式 (40) で表される化合物である。

【0084】

【化105】



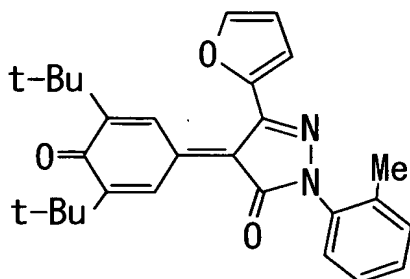
..... 化学式 (40)

【0085】

請求項 29 記載の発明は、下記化学式 (41) で表される化合物である。

【0086】

【化106】



..... 化学式 (41)

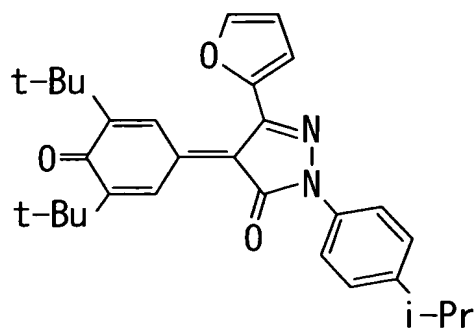
【0087】

請求項 30 記載の発明は、下記化学式 (42) で表される化合物である。

【0088】



【化107】



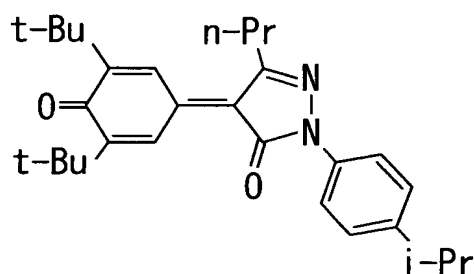
..... 化学式 (42)

【0089】

請求項31記載の発明は、下記化学式(43)で表される化合物である。

【0090】

【化108】



..... 化学式 (43)

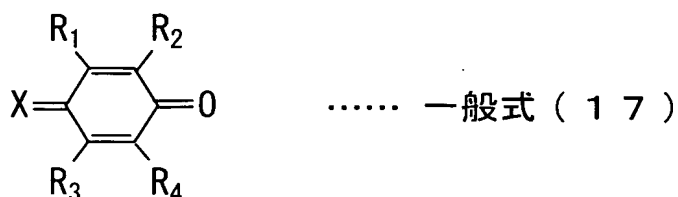
【0091】

尚、上記化学式(7)～(16)、(29)～(43)において、t-Buは三級ブチル基((CH<sub>3</sub>)<sub>3</sub>CH-)を、n-Buは直鎖状ブチル(CH<sub>3</sub>CH<sub>2</sub>CH<sub>2</sub>CH<sub>2</sub>-)を、Meはメチル基(CH<sub>3</sub>-)を、n-Prは直鎖状プロピル基(CH<sub>3</sub>CH<sub>2</sub>CH<sub>2</sub>-)を、i-Prはイソプロピル基((CH<sub>3</sub>)<sub>2</sub>CH-)をそれぞれ示している。

請求項32記載の発明は、下記一般式(17)で表されるベンゾキノン化合物と、

【0092】

## 【化109】



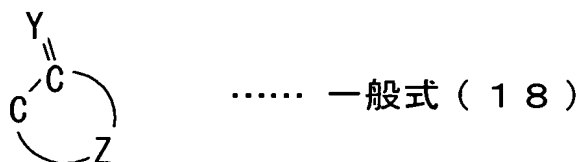
## 【0093】

(前記一般式(17)において、置換基 $R_1 \sim R_4$ は、水素原子と、シアノ基と、ニトロ基と、ハロゲン原子と、ヒドロキシ基と、アルキル基と、アリール基と、複素環基と、エステル基と、アルコキシ基と、アラルキル基と、アリル基と、アミド基と、アミノ基と、アシル基と、アルケニル基と、アルキニル基と、カルボキシル基と、カルボニル基と、カルボン酸基とからなる群より選択されるいずれか1種類の置換基である。置換基Xは酸素と、イオウと、 $=C(CN)_2$ とからなる群より選択されるいずれか1種類の置換基である。)

で表されるベンゾキノン化合物と、下記一般式(18)、

## 【0094】

## 【化110】



## 【0095】

(前記一般式(18)で表される化合物は4員環以上8員環以下の環であって、一般式(18)中の置換基Yは酸素又はイオウのいずれか一方の元素であり、構造Zは環を構成する2以上の原子からなる。)

で表される活性メチレンを有する化合物とを、塩基触媒存在下で反応させ、下記一般式(1)、

## 【0096】

## 【化 1 1 1】

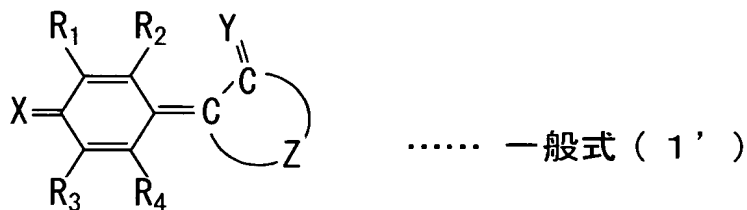


## 【0 0 9 7】

(前記一般式(1)において、置換基 $R_1 \sim R_4$ は、水素原子と、シアノ基と、ニトロ基と、ハロゲン原子と、ヒドロキシ基と、アルキル基と、アリール基と、複素環基と、エステル基と、アルコキシ基と、アラルキル基と、アリル基と、アミド基と、アミノ基と、アシル基と、アルケニル基と、アルキニル基と、カルボキシ基と、カルボニル基と、カルボン酸基とからなる群より選択されるいずれか1種類の置換基である。置換基Xは酸素と、イオウと、 $=C(CN)_2$ からなる群より選択されるいずれか1種類の置換基である。置換基Wは4員環以上8員環以下の環であって、上記一般式(1)を下記一般式(1')に書き換えたときに、

## 【0 0 9 8】

## 【化 1 1 2】



## 【0 0 9 9】

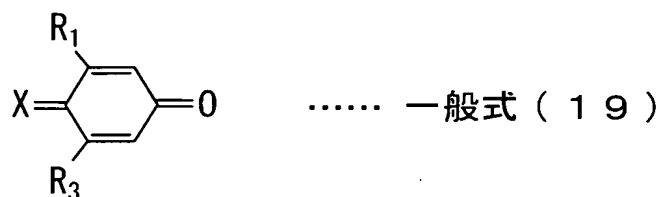
置換基Yは酸素又はイオウのいずれか一方の元素であり、構造Zは環を構成する2以上の原子からなる。)で表される化合物を製造する化合物製造方法である。この発明により、電子移動化合物を容易に製造することが可能である。尚、反応速度を調整するために、ベンゾキノン化合物や活性メチレンを有する化合物に対して不活性な溶媒(不活性溶媒)を塩基触媒と共に添加し、反応を行っても良い。

## 【0 1 0 0】

請求項33記載の発明は、下記一般式(19)、

【0101】

【化113】



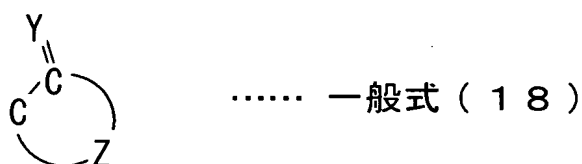
【0102】

(前記一般式(19)において、置換基  $R_1$ 、 $R_3$  は、水素原子と、炭素数が1以上6以下のアルキル基と、フェニル基とからなる群より選択されるいずれか1種類の置換基である。置換基  $X$  は酸素と、イオウと、 $=C(CN)_2$  とからなる群より選択されるいずれか1種類の置換基である。)

で表されるベンゾキノン化合物と、下記一般式(18)、

【0103】

【化114】



【0104】

(前記一般式(18)で表される化合物は4員環以上8員環以下の環であって、一般式(18)中の置換基  $Y$  は酸素又はイオウのいずれか一方の元素であり、構造  $Z$  は環を構成する2以上の原子からなる。)

で表される活性メチレンを有する化合物とを、塩基触媒存在下で反応させ、下記一般式(2)、

【0105】

## 【化 115】

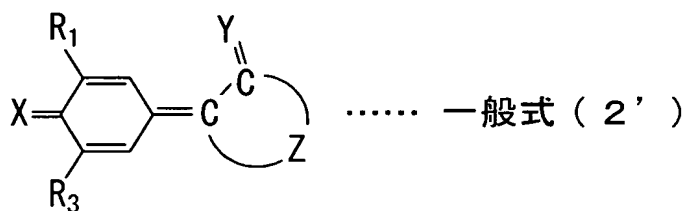


## 【0106】

(前記一般式 (2) において、置換基  $R_1$ 、 $R_3$  は、水素原子と、シアノ基と、ニトロ基と、ハロゲン原子と、ヒドロキシ基と、アルキル基と、アリール基と、複素環基と、エステル基と、アルコキシ基と、アラルキル基と、アリル基と、アミド基と、アミノ基と、アシル基と、アルケニル基と、アルキニル基と、カルボキシル基と、カルボニルと、カルボン酸基とからなる群より選択されるいずれか 1 種類の置換基である。置換基  $X$  は酸素と、イオウと、 $=C(CN)_2$  とからなる群より選択されるいずれか 1 種類の置換基である。置換基  $W$  は 4 員環以上 8 員環以下の環であって、上記一般式 (2) を下記一般式 (2') に書き換えたときに、

## 【0107】

## 【化 116】



## 【0108】

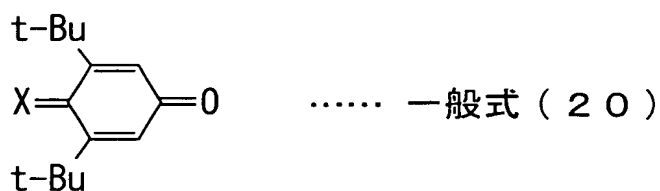
置換基  $Y$  は酸素又はイオウのいずれか一方の元素であり、構造  $Z$  は環を構成する 2 以上の原子からなる。) で表される化合物を製造する化合物製造方法である。

## 【0109】

請求項 34 記載の発明は、下記一般式 (20)、

## 【0110】

【化 117】

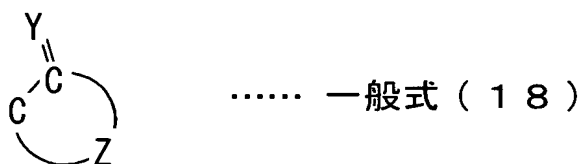


【0111】

(前記一般式(20)において、置換基Xは酸素と、イオウと、 $=C(CN)_2$ とからなる群より選択されるいずれか1種類の置換基である。)で表されるベンゾキノン化合物と、下記一般式(18)

【0112】

【化 118】

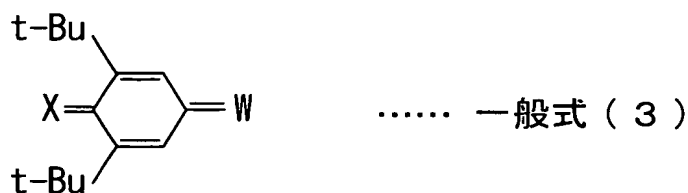


【0113】

(前記一般式(18)で表される化合物は4員環以上8員環以下の環であって、一般式(18)中の置換基Yは酸素又はイオウのいずれか一方の元素であり、構造Zは環を構成する2以上の原子からなる。)で表される活性メチレンを有する化合物とを、塩基触媒存在下で反応させ、下記一般式(3)、

【0114】

【化 119】



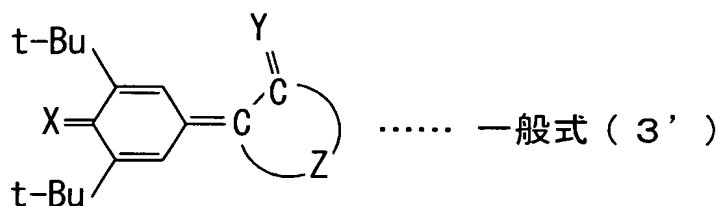
【0115】

(前記一般式(3)において、置換基Xは酸素と、イオウと、 $=C(CN)_2$ とからなる群より選択されるいずれか1種類の置換基である。置換基Wは4員環以上8

員環以下の環であって、上記一般式 (3) を下記一般式 (3') に書き換えたときに、

【0116】

【化120】



【0117】

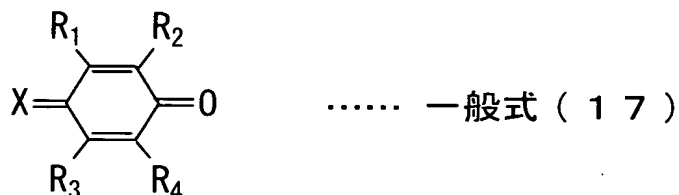
置換基 Y は酸素又はイオウのいずれか一方の元素であり、構造 Z は環を構成する 2 以上の原子からなる。) で表される化合物を製造する化合物製造方法である。

【0118】

請求項 35 記載の発明は、下記一般式 (17)、

【0119】

【化121】



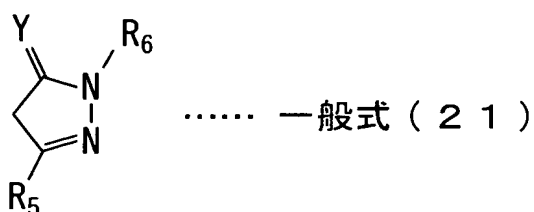
【0120】

(前記一般式 (17) において、置換基 R<sub>1</sub> ~ R<sub>4</sub> は、水素原子と、シアノ基と、ニトロ基と、ハロゲン原子と、ヒドロキシ基と、アルキル基と、アリール基と、複素環基と、エステル基と、アルコキシ基と、アラルキル基と、アリル基と、アミド基と、アミノ基と、アシル基と、アルケニル基と、アルキニル基と、カルボキシル基と、カルボニル基と、カルボン酸基とからなる群より選択されるいずれか 1 種類の置換基である。置換基 X は酸素と、イオウと、=C(CN)<sub>2</sub> とからなる群より選択されるいずれか 1 種類の置換基である。)

で表されるベンゾキノン化合物と、下記一般式 (21)、

【0121】

## 【化 1 2 2】



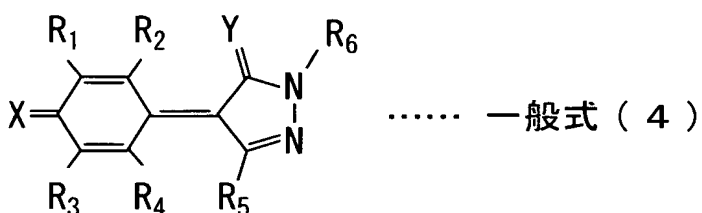
## 【0 1 2 2】

(前記一般式(21)において、置換基 $R_5$ 、 $R_6$ は、水素原子と、シアノ基と、ニトロ基と、ハロゲン原子と、ヒドロキシ基と、アルキル基と、アリール基と、複素環基と、エステル基と、アルコキシ基と、アラルキル基と、アリル基と、アミド基と、アミノ基と、アシル基と、アルケニル基と、アルキニル基と、カルボキシル基と、カルボニル基と、カルボン酸基とからなる群より選択されるいずれか1種類の置換基である。置換基 $Y$ は酸素又はイオウのいずれか一方の元素からなる。)

で表される活性メチレンを有する化合物とを、塩基触媒存在下で反応させ、下記一般式(4)、

## 【0 1 2 3】

## 【化 1 2 3】



## 【0 1 2 4】

(前記一般式(4)において、置換基 $R_1 \sim R_6$ は、水素原子と、シアノ基と、ニトロ基と、ハロゲン原子と、ヒドロキシ基と、アルキル基と、アリール基と、複素環基と、エステル基と、アルコキシ基と、アラルキル基と、アリル基と、アミド基と、アミノ基と、アシル基と、アルケニル基と、アルキニル基と、カルボキシル基と、カルボニル基と、カルボン酸基とからなる群より選択されるいずれか1種類の置換基である。置換基 $X$ は酸素と、イオウと、 $=C(CN)_2$ とからなる群より選択されるいずれか1種類の置換基であり、置換基 $Y$ は酸素又はイオウの



いずれか一方の元素からなる。)

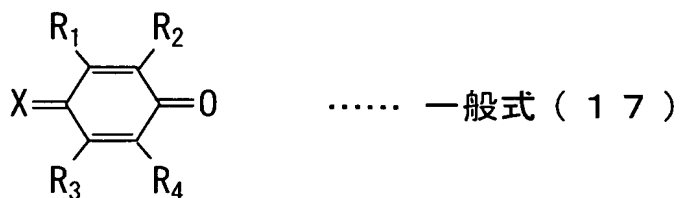
で表される化合物を製造する化合物製造方法である。

【0125】

請求項 36 記載の発明は、下記一般式 (17)

【0126】

【化124】



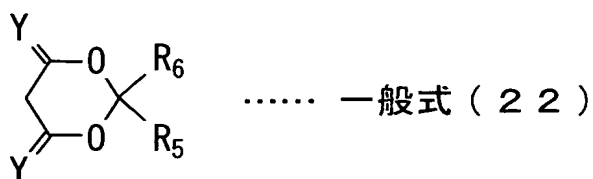
【0127】

(前記一般式(17)において、置換基  $R_1 \sim R_4$  は、水素原子と、シアノ基と、ニトロ基と、ハロゲン原子と、ヒドロキシ基と、アルキル基と、アリール基と、複素環基と、エステル基と、アルコキシ基と、アラルキル基と、アリル基と、アミド基と、アミノ基と、アシル基と、アルケニル基と、アルキニル基と、カルボキシル基と、カルボニル基と、カルボン酸基とからなる群より選択されるいずれか1種類の置換基である。置換基 X は酸素と、イオウと、 $=C(CN)_2$  とからなる群より選択されるいずれか1種類の置換基である。)

で表されるベンゾキノン化合物と、下記一般式 (22)、

【0128】

【化125】



【0129】

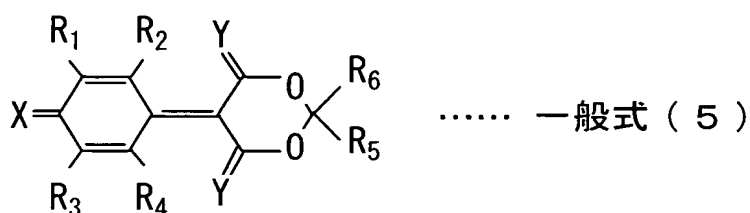
(前記一般式(22)において、置換基  $R_5$ 、 $R_6$  は、水素原子と、シアノ基と、ニトロ基と、ハロゲン原子と、ヒドロキシ基と、アルキル基と、アリール基と、複素環基と、エステル基と、アルコキシ基と、アラルキル基と、アリル基と、アミ

ド基と、アミノ基と、アシル基と、アルケニル基と、アルキニル基と、カルボキシ基と、カルボニル基と、カルボン酸基とからなる群より選択されるいずれか 1 種類の置換基である。置換基 Y は酸素又はイオウのいずれか一方の元素からなる。) )

で表される活性メチレンを有する化合物とを、塩基触媒存在下で反応させ、下記一般式 (5) 、

【0130】

【化126】



【0131】

(前記一般式 (5) において、置換基 R<sub>1</sub> ~ R<sub>6</sub> は、水素原子と、シアノ基と、ニトロ基と、ハロゲン原子と、ヒドロキシ基と、アルキル基と、アリール基と、複素環基と、エステル基と、アルコキシ基と、アラルキル基と、アリル基と、アミド基と、アミノ基と、アシル基と、アルケニル基と、アルキニル基と、カルボキシ基と、カルボニル基と、カルボン酸基とからなる群より選択されるいずれか 1 種類の置換基である。置換基 X は酸素と、イオウと、=C(CN)<sub>2</sub> とからなる群より選択されるいずれか 1 種類の置換基であり、置換基 Y は酸素又はイオウのいずれか一方の元素からなる。) )

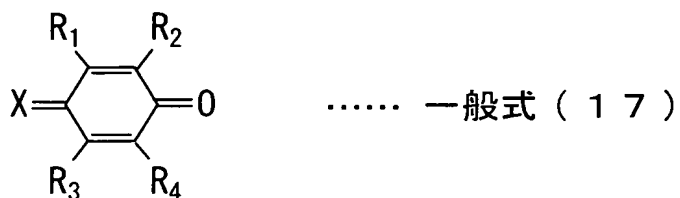
で表される化合物を製造する化合物製造方法である。

【0132】

請求項 37 記載の発明は、下記一般式 (17) 、

【0133】

## 【化 1 2 7】



## 【0 1 3 4】

(前記一般式(17)において、置換基 $R_1 \sim R_4$ は、水素原子と、シアノ基と、ニトロ基と、ハロゲン原子と、ヒドロキシ基と、アルキル基と、アリール基と、複素環基と、エステル基と、アルコキシ基と、アラルキル基と、アリル基と、アミド基と、アミノ基と、アシル基と、アルケニル基と、アルキニル基と、カルボキシル基と、カルボニル基と、カルボン酸基とからなる群より選択されるいずれか1種類の置換基である。置換基Xは酸素と、イオウと、 $=C(CN)_2$ とからなる群より選択されるいずれか1種類の置換基である。)

で表されるベンゾキノン化合物と、下記一般式(23)、

## 【0 1 3 5】

## 【化 1 2 8】



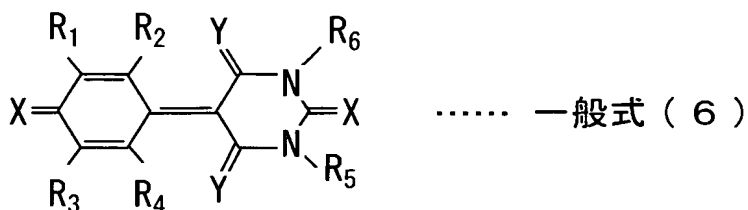
## 【0 1 3 6】

(前記一般式(23)において、置換基 $R_5$ 、 $R_6$ は、水素原子と、シアノ基と、ニトロ基と、ハロゲン原子と、ヒドロキシ基と、アルキル基と、アリール基と、複素環基と、エステル基と、アルコキシ基と、アラルキル基と、アリル基と、アミド基と、アミノ基と、アシル基と、アルケニル基と、アルキニル基と、カルボキシル基と、カルボニル基と、カルボン酸基とからなる群より選択されるいずれか1種類の置換基である。置換基Xは酸素と、イオウと、 $=C(CN)_2$ とからなる群より選択されるいずれか1種類の置換基である。置換基Yは酸素又はイオウのいずれか一方の元素からなる。)

で表される活性メチレンを有する化合物とを、塩基触媒存在下で反応させ、下記一般式(6)、

【0137】

【化129】



【0138】

(前記一般式(6)において、置換基 $R_1 \sim R_6$ は、水素原子と、シアノ基と、ニトロ基と、ハロゲン原子と、ヒドロキシ基と、アルキル基と、アリール基と、複素環基と、エステル基と、アルコキシ基と、アラルキル基と、アリル基と、アミド基と、アミノ基と、アシル基と、アルケニル基と、アルキニル基と、カルボキシ基と、カルボニル基と、カルボン酸基とからなる群より選択されるいずれか1種類の置換基である。置換基Xは酸素と、イオウと、 $=C(CN)_2$ とからなる群より選択されるいずれか1種類の置換基であり、置換基Yは酸素又はイオウのいずれか一方の元素からなる。)

で表される化合物を製造する化合物製造方法である。

請求項38記載の発明は、請求項32乃至請求項37のいずれか1項記載の化合物製造方法であって、水と、アルコールと、飽和脂肪族炭化水素系溶媒のうち、いずれか1種の溶媒、又は、2種以上の溶媒を混合してなる溶媒と、前記塩基触媒との存在下で、前記ベンゾキノン化合物と、前記活性メチレンを有する化合物とを反応させる化合物製造方法である。

請求項39記載の発明は、請求項32乃至請求項37のいずれか1項記載の化合物製造方法であって、前記一般式(1)～(6)で表される化合物1gを溶解するに50ml以上を必要とする溶媒と、前記塩基触媒との存在下で、前記ベンゾキノン化合物と、前記活性メチレンを有する化合物とを反応させる化合物製造方法である。

【0139】

請求項 40 記載の発明は電子移動剤であって、電荷移動物質として、下記一般式 (1)、

【0140】

【化130】

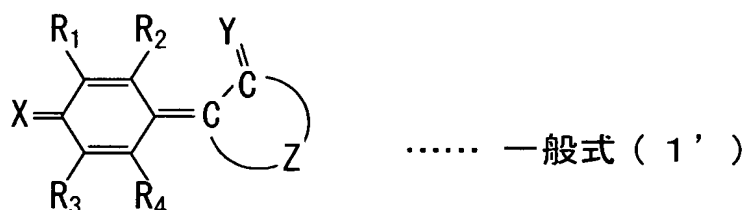


【0141】

(前記一般式(1)において、置換基  $R_1 \sim R_4$  は、水素原子と、シアノ基と、ニトロ基と、ハロゲン原子と、ヒドロキシ基と、アルキル基と、アリール基と、複素環基と、エステル基と、アルコキシ基と、アラルキル基と、アリル基と、アミド基と、アミノ基と、アシル基と、アルケニル基と、アルキニル基と、カルボキシ基と、カルボニル基と、カルボン酸基とからなる群より選択されるいずれか 1 種類の置換基である。置換基 X は酸素と、イオウと、 $=C(CN)_2$  からなる群より選択されるいずれか 1 種類の置換基である。置換基 W は 4 員環以上 8 員環以下の環であって、上記一般式 (1) を下記一般式 (1') に書き換えたときに、

【0142】

【化131】



【0143】

置換基 Y は酸素又はイオウのいずれか一方の元素であり、構造 Z は環を構成する 2 以上の原子からなる。)

で表される化合物を樹脂中に含有することを特徴とする電子移動剤である。

【0144】

請求項 41 記載の発明は、電子移動剤であって、電荷移動物質として下記一般

式 (2)、

【0145】

【化132】

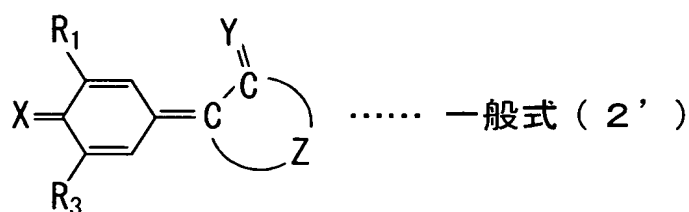


【0146】

(前記一般式 (2) において、置換基  $R_1$ 、 $R_3$  は、水素原子と、シアノ基と、ニトロ基と、ハロゲン原子と、ヒドロキシ基と、アルキル基と、アリール基と、複素環基と、エステル基と、アルコキシ基と、アラルキル基と、アリル基と、アミド基と、アミノ基と、アシル基と、アルケニル基と、アルキニル基と、カルボキシル基と、カルボニルと、カルボン酸基とからなる群より選択されるいずれか 1 種類の置換基である。置換基  $X$  は酸素と、イオウと、 $=C(CN)_2$  とからなる群より選択されるいずれか 1 種類の置換基である。置換基  $W$  は 4 員環以上 8 員環以下の環であって、上記一般式 (2) を下記一般式 (2') に書き換えたときに、

【0147】

【化133】



【0148】

置換基  $Y$  は酸素又はイオウのいずれか一方の元素であり、構造  $Z$  は環を構成する 2 以上の原子からなる。)

で表される化合物を樹脂中に含有することを特徴とする電子移動剤である。

【0149】

請求項 4 2 記載の発明は、電子移動剤であって、電荷移動物質として下記一般

式 (3)、

【0150】

【化134】

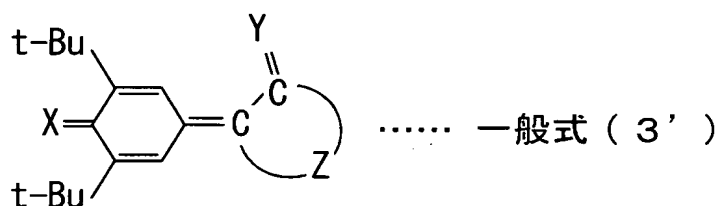


【0151】

(前記一般式(3)において、置換基Xは酸素と、イオウと、 $=C(CN)_2$ とからなる群より選択されるいずれか1種類の置換基である。置換基Wは4員環以上8員環以下の環であって、上記一般式(3)を下記一般式(3')に書き換えたときに、

【0152】

【化135】



【0153】

置換基Yは酸素又はイオウのいずれか一方の元素であり、構造Zは環を構成する2以上の原子からなる。)

で表される化合物を樹脂中に含有することを特徴とする電子移動剤である。

【0154】

請求項43記載の発明は、導電性基体上に少なくとも感光層が設けられた電子写真感光体であって、前記感光層中に電荷移動物質として下記一般式(1)

【0155】

## 【化 136】

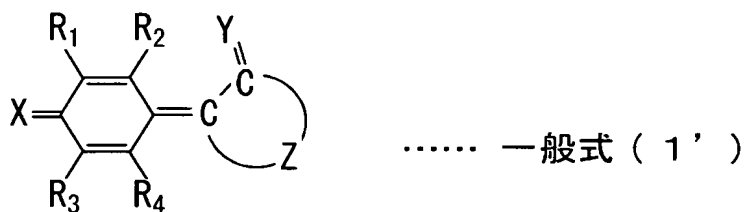


## 【0156】

(前記一般式(1)において、置換基 $R_1 \sim R_4$ は、水素原子と、シアノ基と、ニトロ基と、ハロゲン原子と、ヒドロキシ基と、アルキル基と、アリール基と、複素環基と、エステル基と、アルコキシ基と、アラルキル基と、アリル基と、アミド基と、アミノ基と、アシル基と、アルケニル基と、アルキニル基と、カルボキシ基と、カルボニル基と、カルボン酸基とからなる群より選択されるいずれか1種類の置換基である。置換基Xは酸素と、イオウと、 $=C(CN)_2$ からなる群より選択されるいずれか一種類の置換基である。置換基Wは4員環以上8員環以下の環であって、上記一般式(1)を下記一般式(1')に書き換えたときに、

## 【0157】

## 【化 137】



## 【0158】

置換基Yは酸素又はイオウのいずれか一方の元素であり、構造Zは環を構成する2以上の原子からなる。)

で表される化合物を含有する電子写真感光体である。

## 【0159】

上述した様に、高い電子移動性を有し、樹脂との相溶性が高い化合物を用いることで、高感度の電子写真感光体を提供できる。

## 【0160】

請求項44記載の発明は、導電性基体上に少なくとも感光層が設けられた電子



【 0 1 6 1 】

$$\begin{array}{c} R_1 \\ | \\ X = \text{C}_6\text{H}_2 = W \\ | \\ R_3 \end{array} \quad \dots\dots \text{一般式 (2)}$$

（前記一般式（２）において、置換基 $R_1$ 、 $R_3$ は、水素原子と、シアノ基と、ニトロ基と、ハロゲン原子と、ヒドロキシ基と、アルキル基と、アリール基と、複素環基と、エステル基と、アルコキシ基と、アラルキル基と、アリル基と、アミド基と、アミノ基と、アシル基と、アルケニル基と、アルキニル基と、カルボキシル基と、カルボニルと、カルボン酸基とからなる群より選択されるいずれか１種類の置換基である。置換基 $X$ は酸素と、イオウと、 $=C(CN)_2$ とからなる群より選択されるいずれか１種類の置換基である。置換基 $W$ は４員環以上８員環以下の環であって、上記一般式（２）を下記一般式（２'）に書き換えたときに

【0 1 6 3】

$$\begin{array}{c} \text{R}_1 \\ | \\ \text{X}=\text{C}_6\text{H}_3=\text{C} \begin{array}{c} \text{Y} \\ || \\ \text{C} \end{array} \begin{array}{c} \text{Z} \\ \text{---} \end{array} \\ | \\ \text{R}_3 \end{array} \quad \cdots \cdots \text{一般式 (2')} \quad$$

置換基 Y は酸素又はイオウのいずれか一方の元素であり、構造 Z は環を構成する 2 以上の原子からなる。)

**【 0 1 6 5 】**

出証特 2 0 0 3 - 3 0 8 5 8 4 6

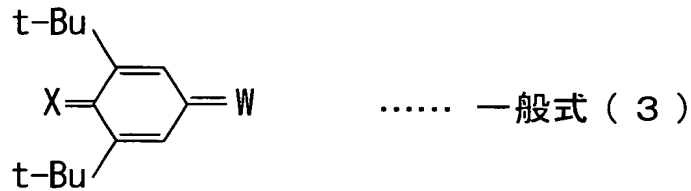
いることで、より高感度の電子写真感光体を提供できる。

【0166】

請求項 45 記載の発明は導電性基体上に少なくとも感光層が設けられた電子写真感光体であって、前記感光層中に電荷移動物質として下記一般式(3)

【0167】

【化140】

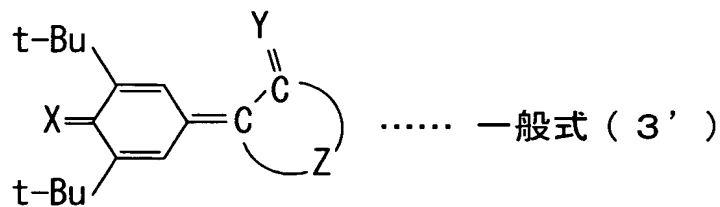


【0168】

(前記一般式(3)において、置換基 X は酸素と、イオウと、 $=C(CN)_2$  とからなる群より選択されるいずれか 1 種類の置換基である。置換基 W は 4 員環以上 8 員環以下の環であって、上記一般式(3)を下記一般式(3')に書き換えたときに、

【0169】

【化141】



【0170】

置換基 Y は酸素又はイオウのいずれか一方の元素であり、構造 Z は環を構成する 2 以上の原子からなる。)

で表される化合物を含有する電子写真感光体である。

【0171】

上述した様に、高い電子移動性を有し、樹脂との相溶性が高い化合物を用いることで、極めて高感度の電子写真感光体を提供できる。

【0172】

請求項 46 記載の発明は一对の電極間に、少なくとも発光可能な有機薄膜が配置された有機エレクトロルミネッセンス素子であって、前記有機薄膜中には、下記一般式 (1)

【0173】

【化142】

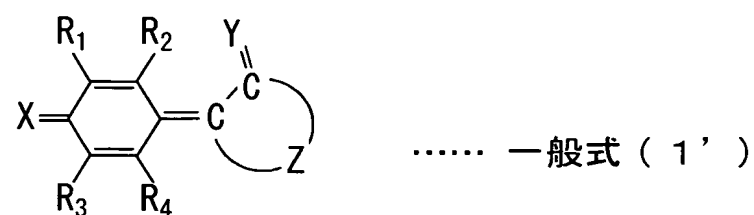


【0174】

(前記一般式(1)において、置換基  $R_1 \sim R_4$  は、水素原子と、シアノ基と、ニトロ基と、ハロゲン原子と、ヒドロキシ基と、アルキル基と、アリール基と、複素環基と、エステル基と、アルコキシ基と、アラルキル基と、アリル基と、アミド基と、アミノ基と、アシル基と、アルケニル基と、アルキニル基と、カルボキシ基と、カルボニル基と、カルボン酸基とからなる群より選択されるいずれか 1 種類の置換基である。置換基 X は酸素と、イオウと、 $=C(CN)_2$  からなる群より選択されるいずれか一種の置換基である。置換基 W は 4 員環以上 8 員環以下の環であって、上記一般式 (1) を下記一般式 (1') に書き換えたときに、

【0175】

【化143】



【0176】

置換基 Y は酸素又はイオウのいずれか一方の元素であり、構造 Z は環を構成する 2 以上の原子からなる。) )

で表される化合物が含有された事の特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子である。

【0177】

請求項47記載の発明は、一対の電極間に、少なくとも発光可能な有機薄膜が配置された有機エレクトロルミネッセンス素子であって、前記有機薄膜中には、下記一般式(2)

【0178】

【化144】

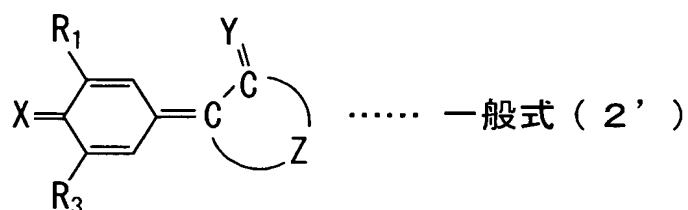


【0179】

(前記一般式(2)において、置換基 $R_1$ 、 $R_3$ は、水素原子と、シアノ基と、ニトロ基と、ハロゲン原子と、ヒドロキシ基と、アルキル基と、アリール基と、複素環基と、エステル基と、アルコキシ基と、アラルキル基と、アリル基と、アミド基と、アミノ基と、アシル基と、アルケニル基と、アルキニル基と、カルボキシル基と、カルボニルと、カルボン酸基とからなる群より選択されるいずれか1種類の置換基である。置換基 $X$ は酸素と、イオウと、 $=C(CN)_2$ とからなる群より選択されるいずれか1種類の置換基である。置換基 $W$ は4員環以上8員環以下の環であって、上記一般式(2)を下記一般式(2')に書き換えたときに、

【0180】

【化145】



【0181】

置換基 $Y$ は酸素又はイオウのいずれか一方の元素であり、構造 $Z$ は環を構成する2以上の原子からなる。)

で表される化合物が含有された事の特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子である。

**【 0 1 8 2 】**

請求項４８記載の発明は一对の電極間に、少なくとも発光可能な有機薄膜が配置された有機エレクトロルミネッセンス素子であって、前記有機薄膜中には、下記一般式（３）

**【 0 1 8 3 】**

【化 1 4 6】

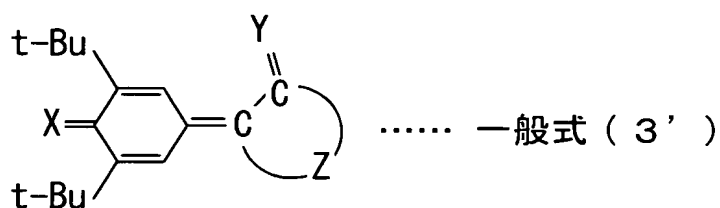


**【 0 1 8 4 】**

(前記一般式(3)において、置換基Xは酸素と、イオウと、 $=C(CN)_2$ とからなる群より選択されるいずれか1種類の置換基である。置換基Wは4員環以上8員環以下の環であって、上記一般式(3)を下記一般式(3')に書き換えたときに、

【0 1 8 5】

【化 1 4 7】



【 0 1 8 6 】

置換基 Y は酸素又はイオウのいずれか一方の元素であり、構造 Z は環を構成する 2 以上の原子からなる。)

で表される化合物が含有された事の特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子である。

尚、上記一般式 (1) ~ (3) 中の W で表される置換基は下記一般式 (28)

【0187】

【化148】



【0188】

(上記一般式(28)中の置換基R'は水素原子と、シアノ基と、ニトロ基と、ハロゲン原子と、ヒドロキシ基と、アルキル基と、アリル基と、アミド基と、アミノ基と、アシル基と、アルケニル基と、アルキニル基と、カルボキシ基と、カルボニル基と、カルボン酸基とからなる群より選択されるいずれか1種類の置換基である。)

で表される置換基である場合を除く。

【0189】

このように、本発明の化合物は高い電子移動性を示すだけでなく、電子移動物質を用いる電子写真感光体や有機エレクトロルミネッセンス素子の材料として必要な機能に応じて分子設計を行なうことができるものである。

【0190】

尚、上記一般式(1)～(6)中のR<sub>1</sub>～R<sub>6</sub>で表される置換基がアルキル基、アリール基、複素環基、エステル基、アルコキシ基、アラルキル基、アリル基、アミド基、アミノ基、アシル基、アルケニル基、アルキニル基、カルボキシ基、カルボニル基、カルボン酸基である場合、それらの基に置換基が結合したのも本発明には含まれる。また、それらの置換基R<sub>1</sub>～R<sub>6</sub>のうち、R<sub>1</sub>とR<sub>2</sub>、R<sub>3</sub>とR<sub>4</sub>は互いに結合して環を形成してもよい。

【0191】

置換基R<sub>1</sub>～R<sub>6</sub>はそれぞれが異なる種類の置換基であっても良く、また、それらの置換基R<sub>1</sub>～R<sub>6</sub>のうち、2つ以上の置換基が同じ種類の置換基であっても良い。

【0192】

また、上記一般式(1)～(3)において、4員環以上8員環以下の環式化合物である置換基Wと他の環状化合物とが縮合し、縮合環を形成した場合も本発明には含まれる。尚、構造Zがヘテロ原子を1個以上含む場合、構造Zが炭素のみからなる場合、及び、構造Zに置換基が結合する場合も本発明には含まれる。

### 【0193】

#### 【発明の実施の形態】

以下、本発明に係る電子移動化合物、電子移動化合物の製造方法、電子移動剤及び応用実施例の形態を詳細に説明する。

### 【0194】

#### [化合物の説明]

本発明に係る電子移動化合物は下記一般式(1)に示すように、活性メチレンを有する環式化合物の活性メチレン基とキノン環とが二重結合した新規な分子骨格を有するものである。

### 【0195】

#### 【化149】

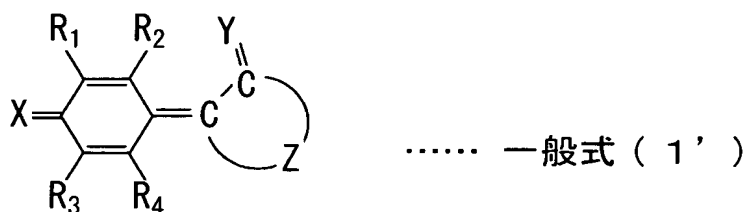


### 【0196】

(前記一般式(1)において、置換基R<sub>1</sub>～R<sub>4</sub>は、水素原子と、シアノ基と、ニトロ基と、ハロゲン原子と、ヒドロキシ基と、アルキル基と、アリール基と、複素環基と、エステル基と、アルコキシ基と、アラルキル基と、アリル基と、アミド基と、アミノ基と、アシル基と、アルケニル基と、アルキニル基と、カルボキシ基と、カルボニル基と、カルボン酸基とからなる群より選択されるいずれか1種類の置換基である。置換基Xは酸素と、イオウと、=C(CN)<sub>2</sub>からなる群より選択されるいずれか1種類の置換基である。置換基Wは4員環以上8員環以下の環であって、上記一般式(1)を下記一般式(1')に書き換えたときに、

### 【0197】

【化150】



【0198】

置換基 Y は酸素又はイオウのいずれか一方の元素であり、構造 Z は環を構成する 2 以上の原子からなる。）

以下にその具体例を示すが、これらの例に限定されるものではない。表 A ( 1 ) ~ 表 A ( 1 8 ) に記載される一般式 ( 1 0 1 ) ~ 一般式 ( 3 1 4 ) は置換基が R<sub>1</sub> ~ R<sub>6</sub> までの一般式一覧を示し、表 A ( 1 9 ) ~ 表 A ( 2 6 ) に記載される一般式 ( 3 1 5 ) ~ 一般式 ( 4 2 3 ) は置換基が R<sub>1</sub> ~ R<sub>5</sub> までの一般式一覧を示す。

【0199】



【表 1】

表 A (1) 一般式一覧表 (置換基  $R_1 \sim R_6$ )

番号	一般式	番号	一般式
101		108	
102		109	
103		110	
104		111	
105		112	
106		113	
107		114	

【0200】

【表 2】

表 A (2) 一般式一覧表 (置換基  $R_1 \sim R_6$ )

番号	一般式	番号	一般式
115		122	
116		123	
117		124	
118		125	
119		126	
120		127	
121		128	

【0201】

【表3】

表A(3) 一般式一覧表(置換基 $R_1 \sim R_6$ )

番号	一般式	番号	一般式
129		136	
130		137	
131		138	
132		139	
133		140	
134		141	
135		142	

【0202】

【表 4】

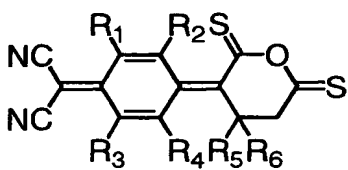
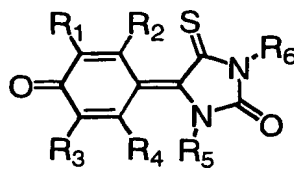
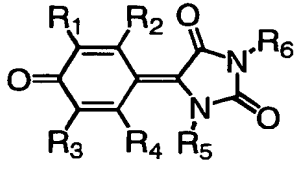
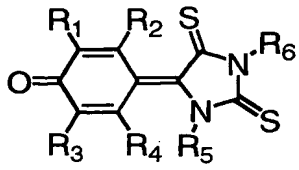
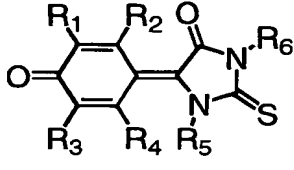
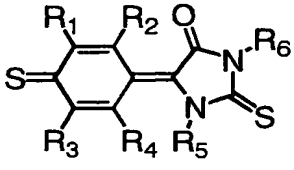
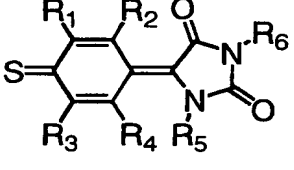
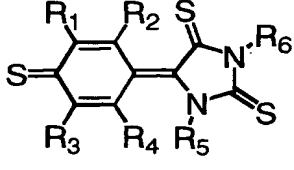
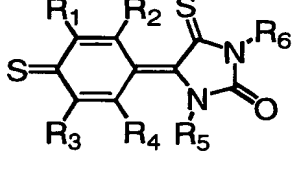
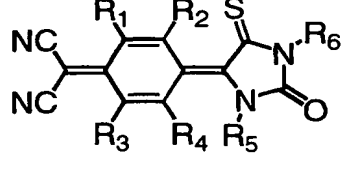
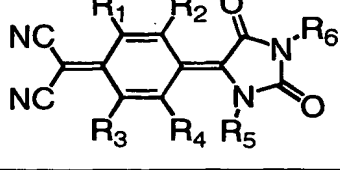
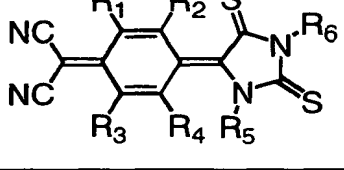
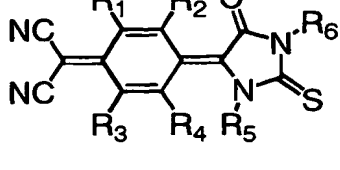
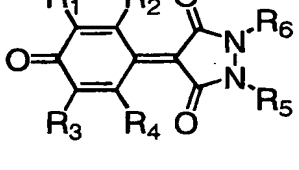
表 A (4) 一般式一覧表 (置換基  $R_1 \sim R_6$ )

番号	一般式	番号	一般式
143		150	
144		151	
145		152	
146		153	
147		154	
148		155	
149		156	

【0203】

【表 5】

表 A (5) 一般式一覧表 (置換基  $R_1 \sim R_6$ )

番号	一般式	番号	一般式
157		164	
158		165	
159		166	
160		167	
161		168	
162		169	
163		170	

【0204】

【表 6】

表 A (6) 一般式一覧表 (置換基  $R_1 \sim R_6$ )

番号	一般式	番号	一般式
171		178	
172		179	
173		180	
174		181	
175		182	
176		183	
177		184	

【0205】

【表 7】

表 A (7) 一般式一覧表 (置換基  $R_1 \sim R_6$ )

番号	一般式	番号	一般式
185		192	
186		193	
187		194	
188		195	
189		196	
190		197	
191		198	

【0206】

【表 8】

表 A (8) 一般式一覧表 (置換基  $R_1 \sim R_6$ )

番号	一般式	番号	一般式
199		206	
200		207	
201		208	
202		209	
203		210	
204		211	
205		212	

【0207】



【表 9】

表 A (9) 一般式一覧表 (置換基  $R_1 \sim R_6$ )

番号	一般式	番号	一般式
213		220	
214		221	
215		222	
216		223	
217		224	
218		225	
219		226	

【0208】

【表 10】

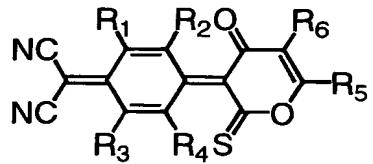
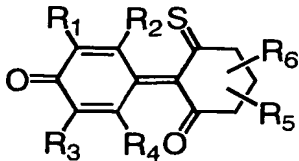
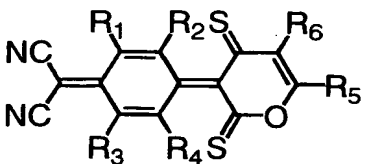
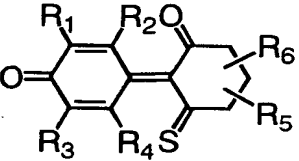
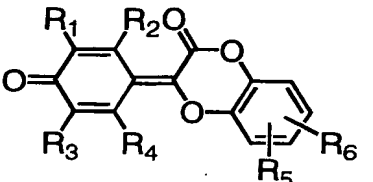
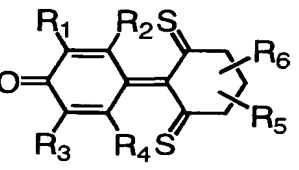
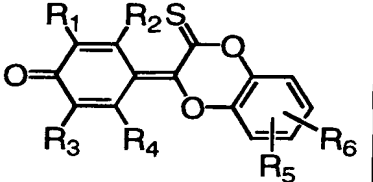
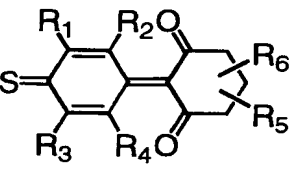
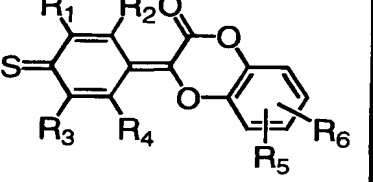
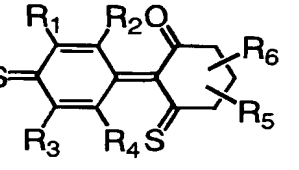
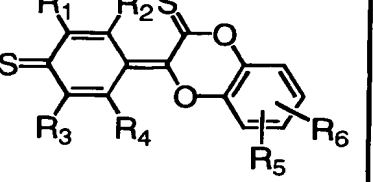
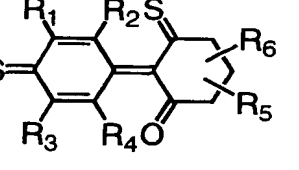
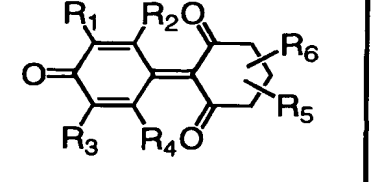
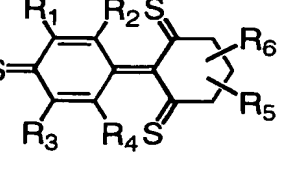
表 A (10) 一般式一覧表 (置換基  $R_1 \sim R_6$ )

番号	一般式	番号	一般式
227		234	
228		235	
229		236	
230		237	
231		238	
232		239	
233		240	

【0209】

【表 11】

表 A (11) 一般式一覧表 (置換基  $R_1 \sim R_6$ )

番号	一般式	番号	一般式
241		248	
242		249	
243		250	
244		251	
245		252	
246		253	
247		254	

【0210】

【表 12】

表 A (12) 一般式一覧表 (置換基  $R_1 \sim R_6$ )

番号	一般式	番号	一般式
255		262	
256		263	
257		264	
258		265	
259		266	
260		267	
261		268	

【0211】

【表 13】

表A (13) 一般式一覧表 (置換基  $R_1 \sim R_6$ )

番号	一般式	番号	一般式
269		276	
270		277	
271		278	
272		279	
273		280	
274		281	
275		282	

【0212】

【表 14】

表 A (14) 一般式一覧表 (置換基  $R_1 \sim R_6$ )

番号	一般式	番号	一般式
283		289	
284		290	
285		291	
286		292	
287		293	
288		294	

【0213】

【表 15】

表A (15) 一般式一覧表 (置換基  $R_1 \sim R_6$ )

番号	一般式
295	
296	
297	
298	
299	
300	

【0214】

【表 16】

表 A (16) 一般式一覧表 (置換基  $R_1 \sim R_6$ )

番号	一般式
301	
302	
303	
304	
305	
306	

【0215】



【表 17】

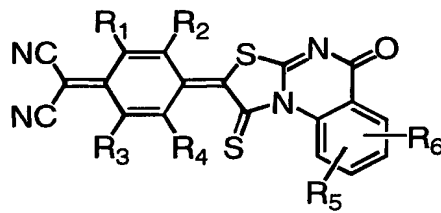
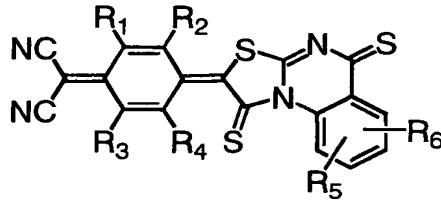
表 A (17) 一般式一覧表 (置換基  $R_1 \sim R_6$ )

番号	一般式
307	
308	
309	
310	
311	
312	

【0216】

【表 18】

表A (18) 一般式一覧表 (置換基  $R_1 \sim R_6$ )

番号	一般式
313	
314	

【0217】

【表 19】

表A (19) 一般式一覧表 (置換基  $R_1 \sim R_5$ )

番号	一般式	番号	一般式
315		322	
316		323	
317		324	
318		325	
319		326	
320		327	
321		328	

【0218】

【表 20】

表A (20) 一般式一覧表 (置換基  $R_1 \sim R_5$ )

番号	一般式	番号	一般式
329		336	
330		337	
331		338	
332		339	
333		340	
334		341	
335		342	

【0219】

【表 21】

表A (21) 一般式一覧表 (置換基  $R_1 \sim R_5$ )

番号	一般式	番号	一般式
343		350	
344		351	
345		352	
346		353	
347		354	
348		355	
349		356	

【0220】

【表 22】

表 A (22) 一般式一覧表 (置換基  $R_1 \sim R_5$ )

番号	一般式	番号	一般式
357		364	
358		365	
359		366	
360		367	
361		368	
362		369	
363		370	

【0221】

【表 23】

表A (23) 一般式一覧表 (置換基  $R_1 \sim R_5$ )

番号	一般式	番号	一般式
371		379	
372		380	
373		381	
374		382	
375		383	
376		384	
378		385	

【0222】

【表 24】

表 A (24) 一般式一覧表 (置換基  $R_1 \sim R_5$ )

番号	一般式	番号	一般式
386		393	
387		394	
388		395	
389		396	
390		397	
391		398	
392		399	

【0223】



【表 25】

表 A (25) 一般式一覧表 (置換基  $R_1 \sim R_5$ )

番号	一般式	番号	一般式
400		407	
401		408	
402		409	
403		410	
404		411	
405		412	
406		413	

【0224】

【表 26】

表A (26) 一般式一覧表 (置換基  $R_1 \sim R_5$ )

番号	一般式	番号	一般式
414		419	
415		420	
416		421	
417		422	
418		423	



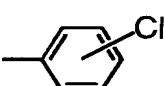
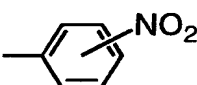
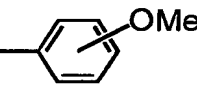
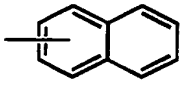
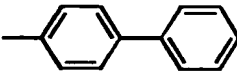
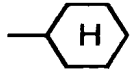

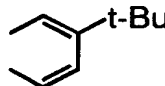
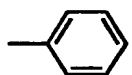

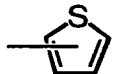
【0225】

表Bは、前記一般式(101)～一般式(423)の置換基  $R_1 \sim R_6$  もしくは  $R_1 \sim R_5$  に適応可能な置換基 S1～S23を示す一覧表である。

【0226】

【表 27】

表B 置換基一覧表

置換基番号	置換基	置換基番号	置換基
S 1	-H	S 13	
S 2	-CH <sub>3</sub>	S 14	
S 3	-t-Bu	S 15	
S 4	-OCH <sub>3</sub>	S 16	
S 5	-CF <sub>3</sub>	S 17	
S 6	-NO <sub>2</sub>	S 18	
S 7	-CO <sub>2</sub> CH <sub>3</sub>	S 19	
S 8	-CH=CH-CH=CH <sub>2</sub>	S 20	
S 9	-C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	S 21	
S 10	-Cl	S 22	
S 11		S 23	
S 12			

**【 0 2 2 7 】**

表 C ( 1 ) ~ 表 C ( 6 ) は置換基が  $R_1 \sim R_6$  である一般式 ( 1 0 1 ) ~ 一般式 ( 3 1 4 ) のそれぞれの置換基の組み合わせを示す表であり、表 C ( 7 ) ~ 表 C ( 1 1 ) は置換基が  $R_1 \sim R_5$  である一般式 ( 3 1 5 ) ~ 一般式 ( 4 2 3 ) のそれぞれの置換基の組み合わせを示す表である。

**【 0 2 2 8 】**

【表 28】

表 C (1) 化合物一覧表 (置換基  $R_1 \sim R_6$ )

$R_1$	$R_2$	$R_3$	$R_4$	$R_5$	$R_6$
S 3	S 1	S 3	S 1	S 1 1	S 1 1
S 3	S 2	S 3	S 1	S 1 1	S 1 1
S 3	S 2	S 3	S 2	S 1 1	S 1 1
S 3	S 1	S 1 2	S 1	S 1 1	S 1 1
S 3	S 2	S 1 2	S 1	S 1 1	S 1 1
S 3	S 2	S 1 2	S 2	S 1 1	S 1 1
S 3	S 1	S 1 3	S 1	S 1 1	S 1 1
S 3	S 2	S 1 3	S 1	S 1 1	S 1 1
S 3	S 2	S 1 3	S 2	S 1 1	S 1 1
S 3	S 1 1	S 3	S 2	S 1 1	S 1 1
S 3	S 1	S 3	S 1	S 1 1	S 1 3
S 3	S 1	S 3	S 1	S 1 1	S 1 2
S 3	S 2	S 3	S 1	S 1 1	S 1 3
S 3	S 2	S 3	S 1	S 1 1	S 1 2
S 3	S 1	S 1 2	S 1	S 1 1	S 1 3
S 3	S 1	S 1 3	S 1	S 1 1	S 1 2
S 3	S 2	S 1 2	S 1	S 1 1	S 1 3
S 3	S 2	S 1 3	S 1	S 1 1	S 1 2
S 3	S 1	S 3	S 1	S 1 2	S 1 3
S 3	S 1	S 3	S 1	S 1 3	S 1 2
S 3	S 2	S 3	S 1	S 1 2	S 1 3
S 3	S 2	S 3	S 1	S 1 3	S 1 2
S 3	S 1	S 1 3	S 1	S 1 2	S 1 3
S 3	S 1	S 1 2	S 1	S 1 3	S 1 3
S 3	S 2	S 1 2	S 1	S 1 2	S 1 3
S 3	S 2	S 1 3	S 1	S 1 3	S 1 2
S 3	S 1	S 3	S 1	S 3	S 1 8
S 3	S 1	S 3	S 1	S 1 4	S 1 5
S 3	S 1	S 3	S 1	S 1 5	S 1 4
S 3	S 1	S 3	S 1	S 1 7	S 1 3
S 3	S 1	S 3	S 1	S 1 6	S 1 2
S 3	S 1	S 3	S 1	S 1 2	S 1 1
S 3	S 1	S 3	S 1	S 1 2	S 1 3
S 3	S 1	S 3	S 1	S 1 3	S 1 1
S 3	S 1	S 3	S 1	S 1 3	S 1 2
S 3	S 2	S 3	S 1	S 1 2	S 1 1
S 3	S 2	S 3	S 1	S 1 3	S 1 1
S 3	S 1	S 4	S 2	S 1 1	S 1 3
S 3	S 6	S 7	S 4	S 2	S 1 2
S 3	S 1 0	S 1 1	S 6	S 1 9	S 1 6
S 3	S 2	S 2 0	S 1 0	S 7	S 1 1

【0229】

【表 29】

表 C (2) 化合物一覧表 (置換基  $R_1 \sim R_6$ )

$R_1$	$R_2$	$R_3$	$R_4$	$R_5$	$R_6$
S 3	S 3	S 3	S 3	S 3	S 1 8
S 3	S 2 0	S 2	S 1 1	S 1 6	S 3
S 3	S 1 1	S 1 0	S 7	S 5	S 1 3
S 3	S 7	S 6	S 1	S 2 0	S 1 5
S 3	S 4	S 1	S 2 0	S 1 8	S 2 0
S 1 2	S 1	S 3	S 1	S 1 1	S 1 3
S 1 2	S 1	S 3	S 1	S 3	S 1 8
S 1 2	S 2	S 3	S 1	S 1 1	S 1 3
S 1 2	S 1	S 3	S 1	S 1 4	S 1 5
S 1 2	S 1	S 3	S 1	S 1 5	S 1 4
S 1 2	S 1	S 3	S 1	S 1 7	S 1 3
S 1 2	S 1	S 3	S 1	S 1 6	S 1 2
S 1 2	S 1	S 3	S 1	S 1 2	S 1 1
S 1 2	S 1	S 3	S 1	S 1 2	S 1 3
S 1 2	S 1	S 3	S 1	S 1 3	S 1 1
S 1 2	S 1	S 3	S 1	S 1 3	S 1 2
S 1 2	S 1	S 1 2	S 1	S 1 2	S 1 1
S 1 2	S 1	S 1 3	S 1	S 1 2	S 1 3
S 1 2	S 1	S 1 3	S 1	S 1 3	S 1 1
S 1 2	S 1	S 1 2	S 1	S 1 3	S 1 2
S 1 2	S 1	S 4	S 2	S 1 1	S 1 3
S 1 2	S 6	S 7	S 4	S 2	S 1 2
S 1 2	S 1 0	S 1 1	S 6	S 1 9	S 1 6
S 1 2	S 2	S 2 0	S 1 0	S 7	S 1 1
S 1 2	S 3	S 3	S 3	S 3	S 1 8
S 1 2	S 2 0	S 2	S 1 1	S 1 6	S 3
S 1 2	S 1 1	S 1 0	S 7	S 5	S 1 3
S 1 2	S 7	S 6	S 1	S 2 0	S 1 5
S 1 2	S 4	S 1	S 2 0	S 1 8	S 2 0
S 1 3	S 1	S 3	S 1	S 1 1	S 1 3
S 1 3	S 1	S 3	S 1	S 3	S 1 8
S 1 3	S 2	S 3	S 1	S 1 1	S 1 3
S 1 3	S 1	S 3	S 1	S 1 4	S 1 5
S 1 3	S 1	S 3	S 1	S 1 5	S 1 4
S 1 3	S 1	S 3	S 1	S 1 7	S 1 3
S 1 3	S 1	S 3	S 1	S 1 6	S 1 2
S 1 3	S 1	S 3	S 1	S 1 2	S 1 1
S 1 3	S 1	S 3	S 1	S 1 2	S 1 3
S 1 3	S 1	S 3	S 1	S 1 3	S 1 1
S 1 3	S 1	S 3	S 1	S 1 3	S 1 2
S 1 3	S 2	S 1 3	S 1	S 1 2	S 1 1

【0 2 3 0】

【表 30】

表 C (3) 化合物一覧表 (置換基  $R_1 \sim R_6$ )

$R_1$	$R_2$	$R_3$	$R_4$	$R_5$	$R_6$
S13	S1	S12	S1	S12	S13
S13	S2	S12	S1	S13	S11
S13	S1	S13	S1	S13	S12
S13	S1	S4	S2	S11	S13
S13	S6	S7	S4	S2	S12
S13	S10	S11	S6	S19	S16
S13	S2	S20	S10	S7	S11
S13	S3	S3	S3	S3	S18
S13	S20	S2	S11	S16	S3
S13	S11	S10	S7	S5	S13
S13	S7	S6	S1	S20	S15
S13	S4	S1	S20	S18	S20
S11	S1	S2	S20	S7	S11
S11	S6	S20	S7	S3	S18
S11	S1	S12	S2	S11	S13
S11	S10	S3	S1	S16	S3
S11	S2	S1	S6	S5	S13
S11	S3	S10	S2	S20	S15
S11	S20	S6	S4	S18	S20
S11	S11	S11	S11	S11	S13
S11	S7	S4	S10	S2	S12
S11	S4	S7	S3	S19	S16
S11	S1	S11	S1	S11	S13
S11	S2	S11	S1	S11	S13
S11	S1	S11	S1	S11	S12
S11	S2	S11	S1	S11	S12
S11	S1	S12	S1	S11	S13
S11	S2	S12	S1	S11	S13
S11	S1	S12	S1	S11	S12
S11	S2	S12	S1	S11	S12
S11	S1	S13	S1	S11	S13
S11	S2	S13	S1	S11	S13
S11	S1	S13	S1	S11	S12
S11	S2	S13	S1	S11	S12
S11	S1	S11	S1	S14	S15
S11	S1	S11	S1	S12	S11
S11	S1	S11	S1	S13	S11
S11	S2	S11	S1	S12	S11
S11	S2	S11	S1	S13	S11
S11	S1	S11	S1	S13	S13
S11	S1	S11	S1	S13	S12

【0231】

【表 31】

表 C (4) 化合物一覧表 (置換基  $R_1 \sim R_6$ )

$R_1$	$R_2$	$R_3$	$R_4$	$R_5$	$R_6$
S11	S1	S11	S1	S12	S13
S11	S1	S11	S1	S13	S13
S11	S1	S12	S1	S12	S11
S11	S1	S12	S1	S13	S11
S11	S2	S12	S1	S12	S11
S11	S2	S12	S1	S13	S11
S11	S1	S12	S1	S12	S12
S11	S1	S12	S1	S13	S12
S11	S1	S12	S1	S12	S13
S11	S1	S12	S1	S13	S13
S11	S1	S13	S1	S12	S11
S11	S1	S13	S1	S13	S11
S11	S2	S13	S1	S12	S11
S11	S2	S13	S1	S13	S11
S11	S1	S13	S1	S12	S12
S11	S1	S13	S1	S13	S12
S11	S1	S13	S1	S12	S13
S11	S1	S13	S1	S13	S13
S11	S11	S11	S1	S11	S13
S11	S1	S7	S1	S11	S13
S15	S1	S15	S1	S11	S13
S17	S1	S11	S1	S11	S13
S11	S1	S11	S1	S12	S11
S11	S1	S11	S1	S13	S11
S13	S1	S13	S1	S11	S13
S8	S1	S2	S1	S11	S13
S21		S8	S1	S11	S13
S21		S8	S1	S12	S11
S21		S3	S1	S11	S13
S21		S21		S11	S13
S22		S21		S11	S12
S23		S9	S1	S11	S13
S2	S2	S2	S1	S14	S15
S2	S2	S2	S1	S11	S13
S2	S1	S11	S7	S20	S15
S2	S1	S11	S7	S12	S11
S2	S6	S4	S1	S18	S20
S2	S10	S7	S20	S5	S13
S2	S2	S2	S2	S2	S12
S2	S3	S20	S4	S19	S16
S2	S3	S20	S4	S13	S11

【0232】



【表 3 2】

表 C (5) 化合物一覧表 (置換基  $R_1 \sim R_6$ )

$R_1$	$R_2$	$R_3$	$R_4$	$R_5$	$R_6$
S 2	S 3	S 1 3	S 4	S 1 3	S 1 1
S 2	S 2 0	S 3	S 6	S 1 1	S 1 3
S 2	S 1 1	S 1	S 1 0	S 3	S 1 8
S 2	S 7	S 1 0	S 3	S 1 6	S 3
S 2	S 4	S 6	S 1 1	S 7	S 1 1
S 2 0	S 1	S 7	S 1 0	S 1 6	S 3
S 2 0	S 6	S 2 2	S 3	S 7	S 2 2
S 2 0	S 1 0	S 4	S 2 2	S 3	S 1 8
S 2 0	S 2	S 3	S 7	S 1 8	S 2 0
S 2 0	S 3	S 2	S 1	S 5	S 1 3
S 2 0	S 2 0	S 2 0	S 2 0	S 2 0	S 1 5
S 2 0	S 2 0	S 2 0	S 2 0	S 1 2	S 1 1
S 2 0	S 1 1	S 6	S 2	S 1 9	S 1 6
S 2 0	S 1 1	S 6	S 2	S 1 3	S 1 1
S 2 0	S 7	S 1	S 4	S 1 1	S 1 3
S 2 0	S 4	S 1 0	S 6	S 2	S 1 2
S 1	S 1	S 1	S 1	S 1 9	S 1 6
S 1	S 1	S 1	S 1	S 1 3	S 1 1
S 1	S 6	S 1 0	S 2 0	S 1 1	S 1 3
S 1	S 1 0	S 6	S 7	S 2	S 1 2
S 1	S 2	S 1 1	S 4	S 1 6	S 3
S 1	S 3	S 4	S 6	S 7	S 1 1
S 1	S 2 0	S 7	S 2	S 3	S 1 8
S 1	S 1 1	S 2	S 3	S 1 8	S 2 0
S 1	S 7	S 2 0	S 1 1	S 5	S 1 3
S 1	S 4	S 3	S 1 0	S 2 0	S 1 5
S 1	S 4	S 3	S 1 0	S 1 2	S 1 1
S 6	S 1	S 1 0	S 4	S 3	S 1 8
S 6	S 6	S 6	S 6	S 1 6	S 3
S 6	S 1 0	S 1	S 2	S 7	S 1 1
S 6	S 2	S 4	S 3	S 2 0	S 1 5
S 6	S 2	S 4	S 3	S 1 2	S 1 1
S 6	S 3	S 7	S 1 1	S 1 8	S 2 0
S 6	S 2 0	S 1 1	S 1 0	S 5	S 1 3
S 6	S 1 1	S 2 0	S 1	S 2	S 1 2
S 6	S 7	S 3	S 2 0	S 1 9	S 1 6
S 6	S 7	S 3	S 2 0	S 1 3	S 1 1
S 6	S 4	S 2	S 7	S 1 1	S 1 3
S 1 0	S 1	S 6	S 3	S 5	S 1 3
S 1 0	S 6	S 1	S 1 1	S 2 0	S 1 5
S 1 0	S 6	S 1	S 1 1	S 1 2	S 1 1

【0 2 3 3】

【表 33】

表 C (6) 化合物一覧表 (置換基  $R_1 \sim R_6$ )

$R_1$	$R_2$	$R_3$	$R_4$	$R_5$	$R_6$
S10	S10	S10	S10	S18	S20
S10	S2	S7	S1	S11	S13
S10	S3	S11	S20	S2	S12
S10	S20	S4	S7	S19	S16
S10	S20	S4	S7	S13	S11
S10	S11	S3	S4	S7	S11
S10	S7	S2	S6	S3	S18
S10	S4	S20	S2	S16	S3
S7	S1	S20	S6	S18	S20
S7	S6	S3	S2	S5	S13
S7	S10	S2	S4	S20	S15
S7	S10	S2	S4	S12	S11
S7	S2	S10	S11	S19	S16
S7	S2	S10	S11	S13	S11
S7	S3	S6	S10	S11	S13
S7	S20	S1	S3	S2	S12
S7	S11	S4	S20	S16	S3
S7	S7	S7	S7	S7	S11
S7	S4	S11	S1	S3	S18
S4	S1	S3	S11	S2	S12
S4	S6	S2	S10	S19	S16
S4	S6	S2	S10	S13	S11
S4	S10	S20	S3	S11	S13
S4	S2	S6	S20	S3	S18
S4	S3	S1	S7	S16	S3
S4	S20	S10	S1	S7	S11
S4	S11	S7	S6	S20	S15
S4	S11	S7	S6	S12	S11
S4	S7	S11	S2	S18	S20
S4	S4	S4	S4	S5	S13

【0234】

【表 34】

表 C (7) 化合物一覧表 (置換基  $R_1 \sim R_5$ )

$R_1$	$R_2$	$R_3$	$R_4$	$R_5$
S3	S1	S3	S1	S11
S3	S1	S12	S1	S11
S3	S1	S13	S1	S11
S3	S1	S3	S1	S3
S3	S2	S3	S1	S11
S3	S2	S12	S1	S11
S3	S2	S13	S1	S11
S3	S1	S3	S1	S14
S3	S1	S3	S1	S15
S3	S1	S3	S1	S17
S3	S1	S3	S1	S16
S3	S1	S3	S1	S12
S3	S1	S3	S1	S13
S3	S2	S3	S1	S12
S3	S2	S3	S1	S13
S3	S1	S4	S2	S11
S3	S6	S7	S4	S2
S3	S10	S11	S6	S19
S3	S2	S20	S10	S7
S3	S3	S3	S3	S3
S3	S20	S2	S11	S16
S3	S11	S10	S7	S4
S3	S7	S6	S1	S20
S3	S4	S1	S20	S15
S12	S1	S3	S1	S11
S12	S1	S3	S1	S3
S12	S2	S3	S1	S11
S12	S1	S12	S1	S11
S12	S1	S13	S1	S11
S12	S1	S12	S1	S3
S12	S1	S13	S1	S3
S12	S2	S12	S1	S11
S12	S2	S13	S1	S11
S12	S1	S3	S1	S14
S12	S1	S3	S1	S15
S12	S1	S3	S1	S17
S12	S1	S3	S1	S16
S12	S1	S3	S1	S12
S12	S1	S3	S1	S13
S12	S1	S12	S1	S12
S12	S1	S13	S1	S13

【0235】

【表 35】

表 C (8) 化合物一覧表 (置換基  $R_1 \sim R_5$ )

$R_1$	$R_2$	$R_3$	$R_4$	$R_5$
S12	S1	S12	S1	S13
S12	S1	S13	S1	S12
S12	S1	S4	S2	S11
S12	S6	S7	S4	S2
S12	S10	S11	S6	S19
S12	S2	S20	S10	S7
S12	S3	S3	S3	S3
S12	S20	S2	S11	S16
S12	S11	S10	S7	S4
S12	S7	S6	S1	S20
S12	S4	S1	S20	S15
S13	S1	S3	S1	S11
S13	S1	S3	S1	S3
S13	S2	S3	S1	S11
S13	S1	S12	S1	S11
S13	S1	S12	S1	S3
S13	S2	S12	S1	S11
S13	S1	S13	S1	S11
S13	S1	S13	S1	S3
S13	S2	S13	S1	S11
S13	S1	S3	S1	S14
S13	S1	S3	S1	S15
S13	S1	S3	S1	S17
S13	S1	S3	S1	S16
S13	S1	S3	S1	S12
S13	S1	S3	S1	S13
S13	S1	S12	S1	S12
S13	S1	S12	S1	S13
S13	S1	S13	S1	S12
S13	S1	S13	S1	S13
S13	S1	S4	S2	S11
S13	S6	S7	S4	S2
S13	S10	S11	S6	S19
S13	S2	S20	S10	S7
S13	S3	S3	S3	S3
S13	S20	S2	S11	S16
S13	S11	S10	S7	S4
S13	S7	S6	S1	S20
S13	S4	S1	S20	S15
S11	S1	S2	S20	S7
S11	S6	S20	S7	S3

【0236】

【表 36】

表 C (9) 化合物一覧表 (置換基  $R_1 \sim R_5$ )

$R_1$	$R_2$	$R_3$	$R_4$	$R_5$
S 1 1	S 1	S 1 2	S 2	S 1 1
S 1 1	S 1 0	S 3	S 1	S 1 6
S 1 1	S 2	S 1	S 6	S 4
S 1 1	S 3	S 1 0	S 2	S 2 0
S 1 1	S 2 0	S 6	S 4	S 1 5
S 1 1	S 1 1	S 1 1	S 1 1	S 1 1
S 1 1	S 7	S 4	S 1 0	S 2
S 1 1	S 4	S 7	S 3	S 1 9
S 1 1	S 1	S 1 1	S 1	S 1 1
S 1 1	S 2	S 1 1	S 1	S 1 1
S 1 1	S 1	S 1 1	S 1	S 1 4
S 1 1	S 1	S 1 1	S 1	S 1 2
S 1 1	S 1	S 1 1	S 1	S 1 3
S 1 1	S 1	S 1 2	S 1	S 1 1
S 1 1	S 2	S 1 2	S 1	S 1 1
S 1 1	S 1	S 1 2	S 1	S 1 4
S 1 1	S 1	S 1 2	S 1	S 1 2
S 1 1	S 1	S 1 2	S 1	S 1 3
S 1 1	S 1	S 1 3	S 1	S 1 1
S 1 1	S 2	S 1 3	S 1	S 1 1
S 1 1	S 1	S 1 3	S 1	S 1 4
S 1 1	S 1	S 1 3	S 1	S 1 2
S 1 1	S 1	S 1 3	S 1	S 1 3
S 1 1	S 1 1	S 1 1	S 1	S 1 1
S 1 1	S 1	S 7	S 1	S 1 1
S 1 5	S 1	S 1 5	S 1	S 1 1
S 1 7	S 1	S 1 1	S 1	S 1 1
S 1 1	S 1	S 1 1	S 1	S 1 2
S 1 1	S 1	S 1 1	S 1	S 1 3
S 1 3	S 1	S 1 3	S 1	S 1 1
S 8	S 1	S 2	S 1	S 1 1
S 2 1		S 8	S 1	S 1 1
S 2 1		S 8	S 1	S 1 2
S 2 1		S 3	S 1	S 1 1
S 2 1		S 2 1		S 1 1
S 2 2		S 2 1		S 1 1
S 2 3		S 9	S 1	S 1 1
S 2	S 2	S 2	S 1	S 1 4
S 2	S 2	S 2	S 1	S 1 1
S 2	S 1	S 1 1	S 7	S 2 0
S 2	S 1	S 1 1	S 7	S 1 2

【0 2 3 7】

【表 37】

表 C (10) 化合物一覧表 (置換基  $R_1 \sim R_5$ )

$R_1$	$R_2$	$R_3$	$R_4$	$R_5$
S 2	S 6	S 4	S 1	S 1 5
S 2	S 1 0	S 7	S 2 0	S 4
S 2	S 2	S 2	S 2	S 2
S 2	S 3	S 2 0	S 4	S 1 9
S 2	S 3	S 2 0	S 4	S 1 3
S 2	S 3	S 1 3	S 4	S 1 3
S 2	S 2 0	S 3	S 6	S 1 1
S 2	S 1 1	S 1	S 1 0	S 3
S 2	S 7	S 1 0	S 3	S 1 6
S 2	S 4	S 6	S 1 1	S 7
S 2 0	S 1	S 7	S 1 0	S 1 6
S 2 0	S 6	S 1 1	S 3	S 7
S 2 0	S 1 0	S 4	S 1 1	S 3
S 2 0	S 2	S 3	S 7	S 1 5
S 2 0	S 3	S 2	S 1	S 4
S 2 0	S 2 0	S 2 0	S 2 0	S 2 0
S 2 0	S 2 0	S 2 0	S 2 0	S 1 2
S 2 0	S 1 1	S 6	S 2	S 1 9
S 2 0	S 1 1	S 6	S 2	S 1 3
S 2 0	S 7	S 1	S 4	S 1 1
S 2 0	S 4	S 1 0	S 6	S 2
S 1	S 1	S 1	S 1	S 1 9
S 1	S 1	S 1	S 1	S 1 3
S 1	S 6	S 1 0	S 2 0	S 1 1
S 1	S 1 0	S 6	S 7	S 2
S 1	S 2	S 1 1	S 4	S 1 6
S 1	S 3	S 4	S 6	S 7
S 1	S 2 0	S 7	S 2	S 3
S 1	S 1 1	S 2	S 3	S 1 5
S 1	S 7	S 2 0	S 1 1	S 4
S 1	S 4	S 3	S 1 0	S 2 0
S 1	S 4	S 3	S 1 0	S 1 2
S 6	S 1	S 1 0	S 4	S 3
S 6	S 6	S 6	S 6	S 1 6
S 6	S 1 0	S 1	S 2	S 7
S 6	S 2	S 4	S 3	S 2 0
S 6	S 2	S 4	S 3	S 1 2
S 6	S 3	S 7	S 1 1	S 1 5
S 6	S 2 0	S 1 1	S 1 0	S 4
S 6	S 1 1	S 2 0	S 1	S 2
S 6	S 7	S 3	S 2 0	S 1 9

【0238】

【表 38】

表 C (11) 化合物一覧表 (置換基  $R_1 \sim R_5$ )

$R_1$	$R_2$	$R_3$	$R_4$	$R_5$
S6	S7	S3	S20	S13
S6	S4	S2	S7	S11
S10	S1	S6	S3	S4
S10	S6	S1	S11	S20
S10	S6	S1	S11	S12
S10	S10	S10	S10	S15
S10	S2	S7	S1	S11
S10	S3	S11	S20	S2
S10	S20	S4	S7	S19
S10	S20	S4	S7	S13
S10	S11	S3	S4	S7
S10	S7	S2	S6	S3
S10	S4	S20	S2	S16
S7	S1	S20	S6	S15
S7	S6	S3	S2	S4
S7	S10	S2	S4	S20
S7	S10	S2	S4	S12
S7	S2	S10	S11	S19
S7	S2	S10	S11	S13
S7	S3	S6	S10	S11
S7	S20	S1	S3	S2
S7	S11	S4	S20	S16
S7	S7	S7	S7	S7
S7	S4	S11	S1	S3
S4	S1	S3	S11	S2
S4	S6	S2	S10	S19
S4	S6	S2	S10	S13
S4	S10	S20	S3	S11
S4	S2	S6	S20	S3
S4	S3	S1	S7	S16
S4	S20	S10	S1	S7
S4	S11	S7	S6	S20
S4	S11	S7	S6	S12
S4	S7	S11	S2	S15
S4	S4	S4	S4	S4

【0239】

[製造方法の説明]

本発明の製造方法は、ベンゾキノン化合物と活性メチレンを有する化合物とを塩基触媒存在下で反応させるものである。本発明の製造方法に用いるベンゾキノン

化合物は、下記一般式 (17) で表されるものである。

【0240】

【化151】



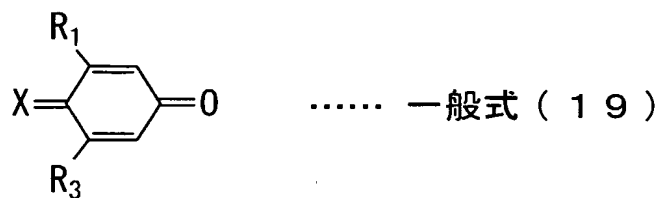
【0241】

(前記一般式(17)において、置換基  $R_1 \sim R_4$  は、水素原子と、シアノ基と、ニトロ基と、ハロゲン原子と、ヒドロキシ基と、アルキル基と、アリール基と、複素環基と、エステル基と、アルコキシ基と、アラルキル基と、アリル基と、アミド基と、アミノ基と、アシル基と、アルケニル基と、アルキニル基と、カルボキシル基と、カルボニル基と、カルボン酸基とからなる群より選択されるいずれか1種類の置換基である。置換基  $X$  は酸素と、イオウと、 $=C(CN)_2$  とからなる群より選択されるいずれか1種類の置換基である。)

一般式 (17) において、 $R_2$  と  $R_4$  が水素原子である下記一般式 (19) が好ましい。

【0242】

【化152】



【0243】

(前記一般式 (19) において、置換基  $R_1$ 、 $R_3$  は、水素原子と、炭素数が1以上6以下のアルキル基と、フェニル基とからなる群より選択されるいずれか1種類の置換基である。置換基  $X$  は酸素と、イオウと、 $=C(CN)_2$  とからなる群より選択されるいずれか1種類の置換基である。)

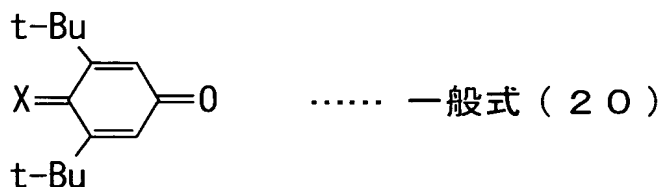
また、一般式 (19) において、 $R_1$  と  $R_3$  が  $t-Bu$  基である下記一般式 (2



0) がより好ましい。

【0244】

【化153】



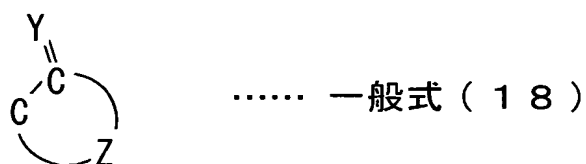
【0245】

(前記一般式(20)において、置換基Xは酸素と、イオウと、 $=C(CN)_2$ とからなる群より選択されるいずれか1種類の置換基である。)

本発明の製造方法に用いる活性メチレンを有する化合物は、下記一般式(18)で表されるものである。

【0246】

【化154】



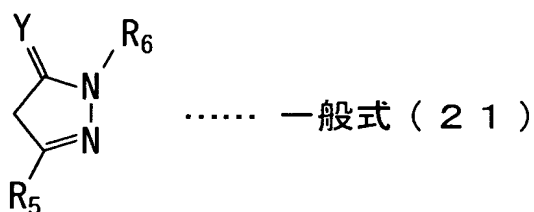
【0247】

(前記一般式(18)で表される化合物は4員環以上8員環以下の環であって、一般式(18)中の置換基Yは酸素又はイオウのいずれか一方の元素であり、構造Zは環を構成する2以上の原子からなる。)

一般式(18)において、下記一般式(21)で表される活性メチレンを有する化合物がより好ましい。

【0248】

## 【化 155】



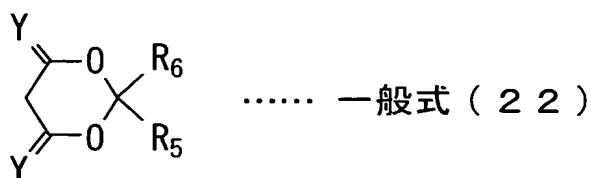
## 【0249】

(前記一般式(21)において、置換基  $R_5$ 、 $R_6$  は、水素原子と、シアノ基と、ニトロ基と、ハロゲン原子と、ヒドロキシ基と、アルキル基と、アリール基と、複素環基と、エステル基と、アルコキシ基と、アラルキル基と、アリル基と、アミド基と、アミノ基と、アシル基と、アルケニル基と、アルキニル基と、カルボキシル基と、カルボニル基と、カルボン酸基とからなる群より選択されるいずれか一つの置換基である。置換基  $Y$  は酸素原子またはイオウ原子のいずれか一方を表す。)

また、一般式(18)において、下記一般式(22)で表される活性メチレンを有する化合物も好ましい。

## 【0250】

## 【化 156】



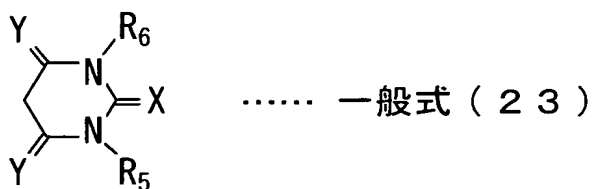
## 【0251】

(前記一般式(22)において、置換基  $R_5$ 、 $R_6$  は、水素原子と、シアノ基と、ニトロ基と、ハロゲン原子と、ヒドロキシ基と、各々置換又は未置換のアルキル基と、アリール基と、複素環基と、エステル基と、アルコキシ基と、アラルキル基と、アリル基と、アミド基と、アミノ基と、アシル基と、アルケニル基と、アルキニル基と、カルボキシル基と、カルボニル基と、カルボン酸基とからなる群より選択されるいずれか1種類の置換基で構成される。置換基  $Y$  は酸素原子又はイオウ原子のいずれか一方の置換基を表す。)

さらにまた、一般式 (18) において、下記一般式 (23) で表される活性メチレンを有する化合物も好ましい。

【0252】

【化157】



【0253】

(前記一般式(23)において、置換基R<sub>5</sub>及びR<sub>6</sub>は、水素原子と、シアノ基と、ニトロ基と、ハロゲン原子と、ヒドロキシ基と、各々置換又は未置換のアルキル基と、アリール基と、複素環基と、エステル基と、アルコキシ基と、アラルキル基と、アリル基と、アミド基と、アミノ基と、アシル基と、アルケニル基と、アルキニル基と、カルボキシ基と、カルボニル基とカルボン酸基とからなる群より選択されるいずれか1種類の置換基で構成される。置換基Xは酸素と、イオウと、=C(CN)<sub>2</sub>とからなる群より選択されるいずれか1種類の置換基を表し、置換基Yは酸素原子またはイオウ原子のいずれか一方を表す。)

本発明の製造方法に用いる塩基触媒は、有機塩基触媒としては例えば、メチルアミン、エチルアミン、プロピルアミン、ブチルアミン等の一級アミン、ジメチルアミン、ジエチルアミン、メチルエチルアミン、ジプロピルアミン、ジブチルアミン等の2級アミン、トリメチルアミン、ジメチルエチルアミン、メチルジエチルアミン、ジメチルプロピルアミン、トリエチルアミン、メチルエチルプロピルアミン、ジエチルプロピルアミン、ジプロピルメチルアミン、エチルジプロピルアミン、トリブチルアミン等の三級アミンや、ピリジン、2,6-ジメチルピリジン、キノリン、1,8-ジアザビシクロ[5.4.0]ウンデセ-7-エン(DBU)、1,5-ジアザビシクロ[4.3.0]ノン-5-エン、1,4-ジアザビシクロ[2.2.2]オクタン等の環式アミン、ナトリウムメトキシド、カリウムメトキシド、ブチルリチウム等の金属アルコキシド、ナトリウムアミド、カリウムアミド等の金属アミドがあげられる。

## 【0254】

無機塩基触媒としては、アンモニア等の塩基性ガス、ナトリウム、カリウム、リチウム等のアルカリ金属、水酸化ナトリウム、水酸化カリウム、水酸化カルシウム等の金属水酸化物、炭酸ナトリウム、炭酸カリウムなどの金属塩等がある。これら塩基でも塩基解離定数がピリジンよりも大きい塩基を用いると、反応が早く進むので好ましい。塩基触媒の種類については、2種類以上の塩基触媒を混合して用いることができる。

## 【0255】

塩基性触媒と不活性溶媒とを併用して用いる場合、不活性溶媒としては、メタノール、エタノール、1-プロパノール、2-プロパノール、ブタノール、エチレングリコール等のアルコール類、ヘキサン、ヘプタン、オクタン、シクロヘキサン、シクロヘプタン等の飽和脂肪族炭化水素、ベンゼン、トルエン、キシレン等の芳香族炭化水素、ジクロロメタン、ジクロロエタン、クロロホルム、四塩化炭素、クロロベンゼン等の塩素系炭化水素、ジエチルエーテル、ジイソプロピルエーテル、テトラヒドロフラン（THF）、ジオキサン、メトキシエタノール等のエーテル類、アセトン、メチルエチルケトン、メチルイソブチルケトン、シクロヘキサノン等のケトン類、ギ酸エチル、ギ酸プロピル、酢酸メチル、酢酸エチル、酢酸プロピル、酢酸ブチル、プロピオン酸メチル等のエステル類、N-メチルピロリドン等がある。これらは単独で用いても、二種類以上の不活性溶媒を混合して用いてもよい。

## 【0256】

反応温度は塩基触媒によっては低温で反応が進行するものもあるが、反応時間を短縮するために室温以上が好ましい。反応の状態により加熱や冷却措置を施してもよい。反応は原料によって異なるが、攪拌させて反応する場合もあり、また各原料を混合した後放置しておいても反応する場合もある。

## 【0257】

## [電子移動剤の説明]

本発明の電子移動剤は、電子移動化合物を樹脂中に含有するものである。電子移動剤中に含有する樹脂としては、ポリカーボネート樹脂、スチレン樹脂、アク

リル樹脂、スチレン-アクリル樹脂、エチレン-酢酸ビニル樹脂、ポリプロピレン樹脂、塩化ビニル樹脂、塩素化ポリエーテル、塩化ビニル-酢酸ビニル樹脂、ポリエステル樹脂、ナイロン樹脂、酢酸ビニル樹脂、フラン樹脂、ニトリル樹脂、アルキッド樹脂、ポリアセタール樹脂、ポリメチルペンテン樹脂、ポリアミド樹脂、ポリウレタン樹脂、エポキシ樹脂、ポリアリレート樹脂、ジアリレート樹脂、ポリスルホン樹脂、ポリエーテルスルホン樹脂、ポリアリルスルホン樹脂、シリコーン樹脂、ケトン樹脂、ポリビニルブチラル樹脂、ポリエーテル樹脂、フェノール樹脂、EVA(エチレン・酢酸ビニル・共重合体)樹脂、ACS(アクリロニトリル・塩素化ポリエチレン・スチレン)樹脂、ABS(アクリロニトリル・ブタジエン・スチレン)樹脂、ポリイミド樹脂及びエポキシアリレート等がある。

#### 【0258】

これらは単体で用いても、共重合体を用いてもよく、また、それらを2種以上混合して使用することも可能である。また、分子量の異なった樹脂を混合して用いれば、硬度や耐摩耗性を改善できて好ましい。

#### 【0259】

本発明の電子移動剤は、その樹脂中に、前記一般式(1)で表される化合物を含有するものである。この化合物は、一般式(2)であると電子移動性が高く好ましく、一般式(3)で表される化合物が電移動性及び樹脂相溶性において特に好ましい。また、これら電子移動剤は、例えば電子写真感光体、導電剤、帯電制御剤、EL素子、光電変換素子、光化学反応の増感剤、電荷移動錯体による高導電性物質等、様々な機能性材料として応用できる。

#### 【0260】

##### [応用例の説明]

##### 電子写真感光体の説明

本発明の電子写真感光体は、導電性基体上に感光層が設けられた電子写真感光体であって、その感光層中に電荷移動物質として電子移動化合物を含有するものである。

#### 【0261】

図 21 の符号 11 と図 22 の符号 12 は、本発明の一例の電子写真感光体を示したものである。電子写真感光体 11 は機能分離型のものであり、電子写真感光体 12 は単層分散型のものである。どちらの電子写真感光体 11、12 も、本発明の化合物を含有する有機薄膜を感光層に用いた場合の実施形態である。

#### 【0262】

図 21 に示した電子写真感光体 11 は、円筒状の導電性支持体 1 上に、電荷発生層 2 と電荷移動層 3 とがこの順で形成されており、これら電荷発生層 2 と電荷移動層 3 とによって感光層 4 が構成される。

#### 【0263】

図 21 に示す電荷発生層 2 は、少なくとも電荷発生物質を有するものであり、この電荷発生層 2 は、その下地となる導電性支持体 1 上に電荷発生物質をバインダー樹脂を用いて結着することにより形成することができる。

#### 【0264】

電荷発生層 2 の形成方法としては、公知の方法等各種の方法を使用することができるが、電荷発生物質をバインダー樹脂とともに適当な溶媒により分散もしくは溶解した塗工液を、所定の下地となる導電性支持体 1 上に塗布し、乾燥させる方法を用いることができる。また、電荷発生物質を真空蒸着することにより電荷発生層 2 を形成することもできる。

#### 【0265】

電荷移動層 3 は、少なくとも後述する電荷移動物質を有するものであり、この電荷移動層 3 は、例えば、その下地となる電荷発生層 2 上に電荷移動物質をバインダー樹脂を用いて結着することにより形成することができる。電荷移動層 3 の形成方法としては、公知の方法等各種の方法を使用することができるが、通常の場合、電荷移動物質をバインダー樹脂とともに適当な溶媒により分散もしくは溶解した塗工液を、所定の下地となる電荷発生層 2 上に塗布し、乾燥させる方法を用いることができる。

#### 【0266】

また、図 22 の符号 12 は、本発明の一例である単層型電子写真感光体であり、前記第一例の電子写真感光体 11 と同じ部材には同じ符号を付して説明すると

、この電子写真感光体 12 では、導電性支持体 1 上に電荷発生物質と電荷移動物質とを含有させた単層の感光層 4 が形成されている。

#### 【0267】

感光層 4 の形成方法としては、公知の方法等各種の方法を使用することができるが、後述する電荷発生物質をバインダー樹脂とともに適当な溶媒により分散もしくは溶解し、更に後述する電荷移動物質を溶解した塗工液を、所定の下地となる導電性支持体 1 上に塗布し、乾燥させる方法を用いることができる。

#### 【0268】

本発明に用いることができる導電性支持体 1 には、アルミニウム、マグネシウム、真鍮、ステンレス鋼、ニッケル、クロム、チタン、金、銀、銅、錫、白金、モリブデン、インジウム等の金属単体やその合金の加工体や、前記金属や炭素等の導電性物質を蒸着、メッキ等の方法で処理し、導電性を持たせたプラスチック板およびフィルム、さらに酸化錫、酸化インジウム、ヨウ化アルミニウム、ヨウ化銅で被覆した導電性ガラス等、種類や形状に制限されることなく、導電性を有する種々の材料を使用して導電性支持体 1 を構成することができる。

#### 【0269】

一般には、円筒状のアルミニウム管単体やその表面をアルマイト処理したもの、またはアルミニウム管上またはアルマイト層上に樹脂層を形成したものがよく用いられている。この樹脂層は接着向上機能、支持体からの流れ込み電流を防止するバリアー機能、支持体表面の欠陥被覆機能などを持つ。この樹脂層には、ポリエチレン樹脂、アクリル樹脂、エポキシ樹脂、ポリカーボネート樹脂、ポリウレタン樹脂、塩化ビニル樹脂、酢酸ビニル樹脂、ポリビニルブチラル樹脂、ポリアミド樹脂、ナイロン樹脂等の各種樹脂を用いることができる。

#### 【0270】

これらの樹脂層は、単独の樹脂で構成しても良く、2 種類以上の樹脂を混合したり、アルマイト処理と組み合わせて構成しても良い。また、層中に金属化合物、金属酸化物、カーボン、シリカ、樹脂粉体等を分散させることもできる。更に、特性改善のために各種顔料、電子受容性物質や電子供与性物質等を含有させることもできる。

**【0271】**

本発明に使用できる電荷発生物質としては、例えば、セレン、セレンーテルル、セレンー砒素、アモルファスシリコン、フタロシアニン顔料、モノアゾ顔料、トリスアゾ顔料、ポリアゾ顔料、インジゴ顔料、トルイジン顔料、ピラゾリン顔料、ペリレン顔料、キナクリドン顔料、ピリリウム塩等を用いることができる。特にこれらの中でもジスアゾ顔料、フタロシアニン顔料が感度を得るために本発明の化合物との相性が良い点で好ましい。

**【0272】**

フタロシアニン顔料としては、長波長領域に光吸収を示す、オキシチタニウムフタロシアニン、銅フタロシアニン、無金属フタロシアニン、ヒドロキシガリウムフタロシアニン、オキシチタニウムフタロシアニンのジオール付加体が特に好ましい。これらの電荷発生物質は単体で用いてもよいし、適切な光感度波長や増感作用を得るために2種類以上を混合して用いてもよい。

**【0273】**

感光層4を形成するために用いることができるバインダー樹脂には、ポリカーボネート樹脂、スチレン樹脂、アクリル樹脂、スチレンーアクリル樹脂、エチレンー酢酸ビニル樹脂、ポリプロピレン樹脂、塩化ビニル樹脂、塩素化ポリエーテル、塩化ビニルー酢酸ビニル樹脂、ポリエステル樹脂、ナイロン樹脂、酢酸ビニル樹脂、フラン樹脂、ニトリル樹脂、アルキッド樹脂、ポリアセタール樹脂、ポリメチルペンテン樹脂、ポリアミド樹脂、ポリウレタン樹脂、エポキシ樹脂、ポリアリレート樹脂、ジアリレート樹脂、ポリスルホン樹脂、ポリエーテルスルホン樹脂、ポリアリルスルホン樹脂、シリコーン樹脂、ケトン樹脂、ポリビニルブチラール樹脂、ポリエーテル樹脂、フェノール樹脂、EVA(エチレン・酢酸ビニル・共重合体)樹脂、ACS(アクリロニトリル・塩素化ポリエチレン・スチレン)樹脂、ABS(アクリロニトリル・ブタジエン・スチレン)樹脂、ポリイミド樹脂及びエポキシアリレート等がある。

**【0274】**

これらは単体で用いても、共重合体を用いてもよく、また、それらを2種以上混合して使用することも可能である。また、分子量の異なった樹脂を混合して用



いれば、硬度や耐摩耗性を改善できて好ましい。前記バインダー樹脂は、図 21 に示す機能分離型感光体においては、電荷発生層 2 及び電荷移動層 3 のどちらにも適用できる。

#### 【0275】

塗工液に使用する溶剤としては、メタノール、エタノール、1-プロパノール、2-プロパノール、ブタノール等のアルコール類、ペンタン、ヘキサン、ヘプタン、オクタン、シクロヘキサン、シクロヘプタン等の飽和脂肪族炭化水素、トルエン、キシレン等の芳香族炭化水素、ジクロロメタン、ジクロロエタン、クロロホルム、クロロベンゼン等の塩素系炭化水素、ジメチルエーテル、ジエチルエーテル、テトラヒドロフラン (THF)、メトキシエタノール等のエーテル類、アセトン、メチルエチルケトン、メチルイソブチルケトン、シクロヘキサノン等のケトン類、ギ酸エチル、ギ酸プロピル、酢酸メチル、酢酸エチル、酢酸プロピル、酢酸ブチル、プロピオン酸メチル等のエステル類、N, N-ジメチルホルムアミド、ジメチルスルホキシド等がある。これらは単独で用いても、2種類以上の溶剤を混合して用いてもよい。

#### 【0276】

本発明の電子写真感光体は、その感光層 4 中に、電荷移動物質として、前記一般式 (1) で表される化合物を含有する。この化合物は、電子移動性が高く、かつ着色性が低いため、感光層中に高濃度で分散できるため好ましい。また、一般式 (2) で表される化合物であるとより電子移動性高くが好ましく、一般式 (3) で表される化合物では、樹脂との相溶性もよいため特に好ましい。

#### 【0277】

さらに、本発明の電子写真感光体には、他の電荷移動物質を添加することもできる。その場合には、感度を高めたり、残留電位を低下させることができるので、本発明の電子写真感光体の特性を改良することができる。

#### 【0278】

そのような特性改良のために添加できる電荷移動物質としては、ポリビニルカルバゾール、ハロゲン化ポリビニルカルバゾール、ポリビニルピレン、ポリビニルインドロキノキサリン、ポリビニルベンゾチオフェン、ポリビニルアントラセ

ン、ポリビニルアクリジン、ポリビニルピラゾリン、ポリアセチレン、ポリチオフエン、ポリピロール、ポリフェニレン、ポリフェニレンビニレン、ポリイソチアナフテン、ポリアニリン、ポリジアセチレン、ポリヘプタジエン、ポリピリジンジイル、ポリキノリン、ポリフェニレンスルフィド、ポリフェロセニレン、ポリペリナフチレン、ポリフタロシアニン等の導電性高分子化合物を用いることができる。

#### 【0279】

又、低分子化合物として、トリニトロフルオレノン、テトラシアノエチレン、テトラシアノキノジメタン、キノン、ジフェノキノン、ナフトキノン、アントラキノン及びこれらの誘導体等、アントラセン、ピレン、フェナントレン等の多環芳香族化合物、インドール、カルバゾール、イミダゾール等の含窒素複素環式化合物、フルオレノン、フルオレン、オキサジアゾール、オキサゾール、ピラゾリン、ヒドラゾン、トリフェニルメタン、トリフェニルアミン、エナミン、スチルベン、ブタジエン化合物等を使用することができる。

#### 【0280】

また、ポリエチレンオキシド、ポリプロピレンオキシド、ポリアクリロニトリル、ポリメタクリル酸等の高分子化合物にLiイオン等の金属イオンをドーブした高分子固体電解質等も用いることができる。さらに、テトラチアフルバレンーテトラシアノキノジメタンで代表される電子供与性化合物と電子受容性化合物で形成された有機電荷移動錯体等も用いることができ、これらを1種だけ添加しても、2種以上の化合物を混合して添加しても所望の感光体特性を得ることができる。

#### 【0281】

なお、本発明の感光体を製造するための塗工液には、電子写真感光体の特性を損なわない範囲で、酸化防止剤、紫外線吸収剤、ラジカル捕捉剤、軟化剤、硬化剤、架橋剤等を添加して、感光体の特性、耐久性、機械特性の向上を図ることができる。

#### 【0282】

さらに、分散安定剤、沈降防止剤、色分かれ防止剤、レベリング剤、消泡剤、

増粘剤、艶消し剤等を添加すれば、感光体の仕上がり外観や、塗工液の寿命を改善できる。

#### 【0283】

加えて、感光層4の上に、エポキシ樹脂、メラミン樹脂、ポリビニルホルマール樹脂、ポリカーボネート樹脂、フッ素樹脂、ポリウレタン樹脂、シリコン樹脂等の有機薄膜や、シランカップリング剤の加水分解物で形成されるシロキサン構造体から成る薄膜を成膜して表面保護層を設けてもよい。その場合には、感光体の耐久性が向上するので好ましい。この表面保護層は、耐久性向上以外の他の機能を向上させるために設けてもよい。

#### 【0284】

##### 有機エレクトロルミネッセンス素子の説明

本発明の有機エレクトロルミネッセンス素子は、一对の電極間に、少なくとも発光体を含有してなる層を有する有機エレクトロルミネッセンス素子において、電子移動性を示す化合物として一般式(1)で表される化合物を含有する事を特徴とする。

#### 【0285】

有機エレクトロルミネッセンス素子は、電極間に単層もしくは多層の有機薄膜(発光体層)を形成した素子である。

図23の符号21は有機エレクトロルミネッセンス素子の一例を示している。この有機エレクトロルミネッセンス素子21はガラス基板23とガラス基板23の一面に形成されたITO電極24とからなる第一の電極22と、第一の電極22のITO電極24の表面に密着配置された発光体層25と、発光体層25の第一の電極22に密着配置された側とは反対側の面に密着配置された第二の電極26とを有している。

#### 【0286】

発光体層25は、発光材料を含有し、それに加えて陽極(第一の電極22)から注入した正孔もしくは陰極(第二の電極26)から移動した電子を発光材料まで移動させるために正孔移動材料もしくは電子移動材料を含有しても良い。発光材料が、正孔移動性もしくは電子移動性を有している場合もある。

**【0287】**

また、発光体層が多層構造を有する場合は、電極間に発光体層、電子移動層、正孔移動層を積層した有機エレクトロルミネッセンス素子がある。各層は目的に応じてその積層順を適宜変更する。

**【0288】**

発光材料としては、アントラセン、ナフタレン、フェナントレン、ピレン、テトラセン、コロネン、クリセン、フルオレセイン、ペリレン、フタロペリレン、ナフタロペリレン、ペリノン、フタロペリノン、ナフタロペリノン、ジフェニルブタジエン、テトラフェニルブタジエン、クマリン、オキサジアゾール、アルダジン、ビスベンゾキサゾリン、ビススチリル、ピラジン、シクロペンタジエン、キノリン金属錯体、アミノキノリン金属錯体、ベンゾキノリン金属錯体、イミン、ジフェニルエチレン、ビニルアントラセン、ジアミノカルバゾール、トリフェニルアミン、ベンジジン型トリフェニルアミン、スチリルアミン型トリフェニルアミン、ジアミン型トリフェニルアミンピラン、チオピラン、ポリメチン、メロシアニン、イミダゾールキレート化オキシノイド化合物、ポルフィリン金属錯体、フタロシアニン錯体、希土類金属錯体、キナクリドン、ルブレンおよび色素レーザー用や増白用の蛍光色素等がある。

**【0289】**

正孔移動材料としては、フタロシアニン誘導体、ナフタロシアニン誘導体、ポルフィリン誘導体、オキサゾール、オキサジアゾール、トリアゾール、イミダゾール、イミダゾロン、イミダゾールチオン、ピラゾリン、ピラゾロン、テトラヒドロイミダゾール、オキサゾール、オキサジアゾール、ヒドラゾン、アシルヒドラゾン、ポリアリーールアルカン、スチルベン、ブタジエン、アミン、ジアミン、トリフェニルアミン、インドール、カルバゾール、トリフェニルメタン、エナミン等と、それらの誘導体、およびポリビニルカルバゾール、ポリシラン、導電性高分子等の高分子材料等があげられる。

**【0290】**

電子移動材料としては、本発明の電子移動化合物のほかに、キノリノール錯体、フルオレノン、アントラキノジメタン、ジフェノキノン、チオピランジオキシ

ド、オキサゾール、オキサジアゾール、トリアゾール、イミダゾール、ペリレンテトラカルボン酸、フレオレニリデンメタン、アントラキノジメタン、アントロン等とそれらの誘導体がある。

#### 【0291】

陽極に使用される導電性材料としては、炭素、アルミニウム、真鍮、ステンレス鋼、クロム、チタン、銅、錫、モリブデン、インジウム、バナジウム、鉄、コバルト、ニッケル、タングステン、銀、金、白金、パラジウム等およびそれらの合金、ITO基板、NE SA基板に使用される酸化スズ、酸化インジウム、ヨウ化アルミニウム、ヨウ化銅等の酸化金属、さらにはポリチオフェンやポリピロール等の有機導電性樹脂が用いられる。

#### 【0292】

陰極に使用される導電性物質としては、マグネシウム、カルシウム、錫、鉛、チタニウム、イットリウム、リチウム、ルテニウム、マンガン、アルミニウム等およびそれらの合金が用いられるが、これらに限定されるものではない。合金としては、マグネシウム／銀、マグネシウム／インジウム、リチウム／アルミニウム等が代表例として挙げられるが、これらに限定されるものではない。合金の比率は、蒸着源の温度、雰囲気、真空度等により制御され、適切な比率に選択される。陽極および陰極は、必要があれば2層以上の層構成により形成されていても良い。

#### 【0293】

##### 【実施例】

以下、本発明に係る化合物の製造例、及び電子移動剤の実施例、並びに応用例である電子写真感光体及び有機エレクトロルミネッセンス素子の応用実施例を詳細に説明する。

#### 【0294】

まず、前記一般式(1)で表される化合物の製造方法の一例を説明する。

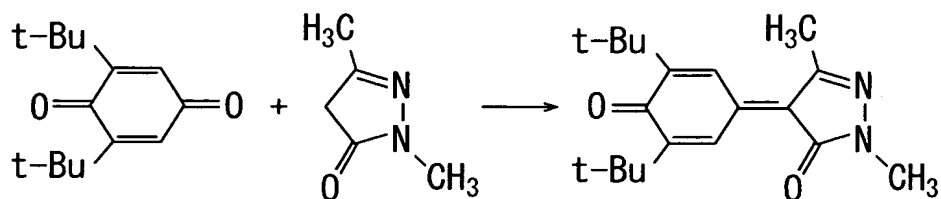
##### <製造例1>

ベンゾキノン化合物である2,6-ジ-tert-ブチルベンゾキノン0.44g(2ミリモル)と活性メチレンを有するピラズロン化合物を0.23g(2

ミリモル) に塩基触媒のピリジン 2 ml を加え攪拌下、室温で反応させた。反応液を濃縮しシリカゲルカラムクロマト (展開溶媒=ヘキサン:酢酸エチル=10:1) にて精製し式 (7) である 2, 6-ジ-tert-ブチル-4-(1, 3-ジメチル-5-オキソ-4-ピラゾリリデン)-2, 5-シクロヘキサジエン-1-オンを収率 36% で得た。この反応を下記化学反応式 (25) に示す。

【0295】

【化158】



..... 化学反応式 (25)

【0296】

<製造例 2>

前記製造例 1 と同様の実験において、塩基触媒であるピリジンを 1, 8-ジアザビシクロ [5. 4. 0] ウンデセ-7-エン (DBU) に代えた以外は実施例 1 と同様に実験を行ない、目的物質を収率 35% で得た。

【0297】

<製造例 3>

前記製造例 1 と同様の実験において、塩基触媒であるピリジンをトリメチルアミンに代えた以外は実施例 1 と同様に実験を行ない、目的物質を収率 32% で得た。

【0298】

<製造例 4>

前記製造例 1 と同様の実験において、塩基触媒であるピリジンを 2, 6-ジメチルピリジンに代えた以外は実施例 1 と同様に実験を行ない、目的物質を収率 35% で得た。

<製造例 5>

前記製造例 1 と同様の実験において、塩基触媒であるピリジンをトリブチルアミンに代えた以外は実施例 1 と同様に実験を行い、目的物質を収率 3 0 % で得た。

【 0 2 9 9 】

< 製造例 6 >

前記製造例 1 と同様の実験において、不活性溶媒であるエタノールを 2 0 m l 添加し、塩基触媒であるピリジンを水酸化ナトリウムに代えた以外は実施例 1 と同様に実験を行ない、目的物質を収率 3 0 % で得た。

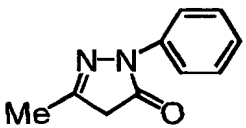
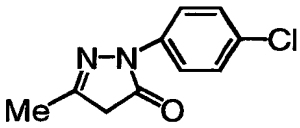
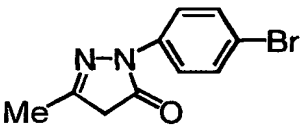
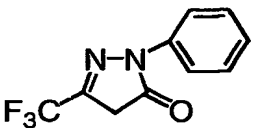
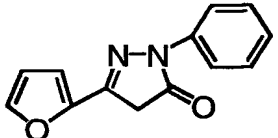
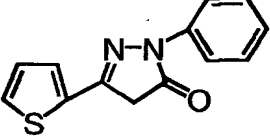
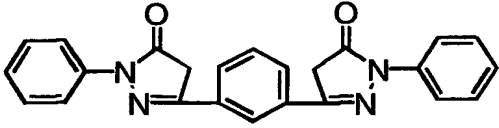
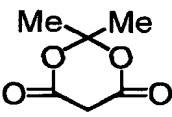
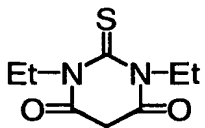
【 0 3 0 0 】

< 製造例 7 ～ 1 5 >

次に活性メチレンを有する化合物を変えた時の、反応温度、反応時間及び収率を表 D ( 1 ) に、各製造例で得られた式 ( 8 ) ～ ( 1 6 ) の化合物の構造式及び名称を表 D ( 2 ) 及び表 D ( 3 ) に示す。

【 0 3 0 1 】

【表 39】

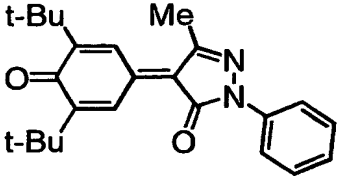
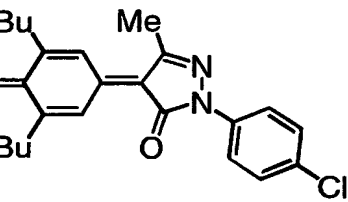
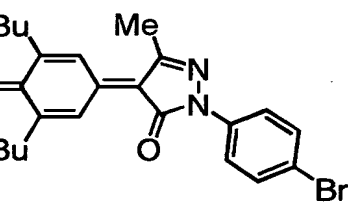
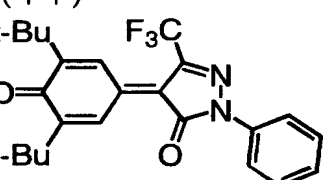
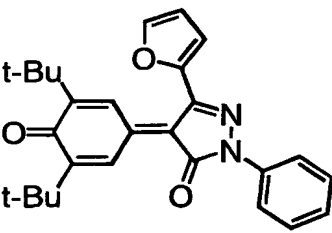
表D(1) 製造例7~15の合成例		
製造例	活性メチレンを有する化合物	反応温度
		反応時間
		収率 (%)
7		20℃
		20時間
		32
8		20℃
		20時間
		67
9		20℃
		20時間
		63
10		45℃
		3.5時間
		41
11		20℃
		20時間
		37
12		20℃
		20時間
		37
13		45℃
		8時間
		30
14		20℃
		20時間
		55
15		20℃
		30分
		10

【0302】



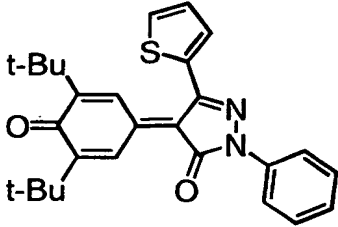
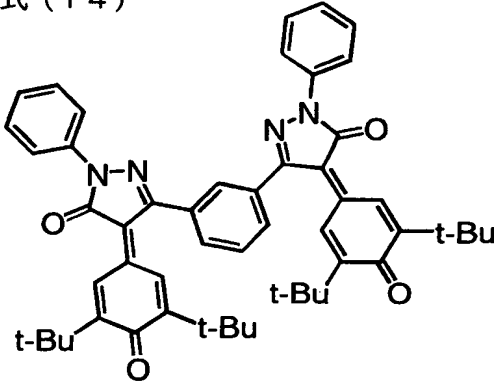
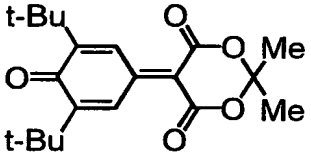
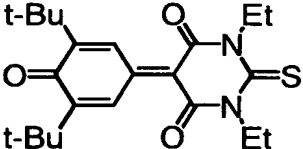
【表 40】

表D(2) 製造例7~15で合成された化合物

製造例	化合物	化合物名
7	式(8) 	2,6-ジ-tert-ブチル-4-(3-メチル-1-フェニル-5-オキソ-4-ピラゾリリデン)-2,5-シクロヘキサジエン-1-オン
8	式(9) 	2,6-ジ-tert-ブチル-4-[3-メチル-1-(4-クロロフェニル)-5-オキソ-4-ピラゾリリデン]-2,5-シクロヘキサジエン-1-オン
9	式(10) 	2,6-ジ-tert-ブチル-4-[3-メチル-1-(4-ブロモフェニル)-5-オキソ-4-ピラゾリリデン]-2,5-シクロヘキサジエン-1-オン
10	式(11) 	2,6-ジ-tert-ブチル-4-(3-トリフルオロメチル-1-フェニル-5-オキソ-4-ピラゾリリデン)-2,5-シクロヘキサジエン-1-オン
11	式(12) 	2,6-ジ-tert-ブチル-4-[3-(2-フラニル)-1-フェニル-5-オキソ-4-ピラゾリリデン]-2,5-シクロヘキサジエン-1-オン

【0303】

【表 4 1】

表 D (3) 製造例 7 ~ 15 で合成された化合物		
製造例	化合物	化合物名
12	式 (13) 	2,6-ジ-tert-ブチル-4-[3-(2-チエニル)-1-フェニル-5-オキソ-4-ピラゾリリデン]-2,5-シクロヘキサジエン-1-オン
13	式 (14) 	1,3-ビス-3-(2,6-ジ-tert-ブチル-1-オキソ-2,5-シクロヘキサジエン-4-イリデン)-1-フェニル-5-オキソ-4-ピラゾリルベンゼン
14	式 (15) 	2,6-ジ-tert-ブチル-4-(2,2-ジメチル-1,3-ジオキサ-4,6-ジオン-5-イリデン)-2,5-シクロヘキサジエン-1-オン
15	式 (16) 	2,6-ジ-tert-ブチル-4-(1,3-ジエチル-2-チオキソ-4,6-ジオキソ-5-ピリミジニリデン)-2,5-シクロヘキサジエン-1-オン

## 【0304】

製造例 1 及び製造例 7 ~ 15 で得られた式 (7) ~ (16) の化合物の融点と元素分析値を表 E に示す。

## 【0305】

【表 4 2】

表E 化合物(7)～(16)の融点及び元素分析値

化合物	融点 (°C)	元素分析値	
		計算値 (%)	実測値 (%)
(7)	135.6～136.4	C:72.58,H:8.33,N:8.91	C:72.32,H:8.45,N:8.71
(8)	165.7～166.0	C:76.56,H:7.50,N:7.44	C:76.66,H:7.67,N:7.70
(9)	214.4～215.1	C:70.15,H:6.62,N:6.82	C:70.35,H:6.48,N:6.61
(10)	212.6～213.3	C:63.30,H:5.98,N:6.15	C:63.41,H:5.88,N:6.03
(11)	159.0～159.5	C:66.96,H:5.85,N:6.51	C:67.11,H:5.78,N:6.34
(12)	200.5～201.0	C:75.68,H:6.59,N:6.54	C:75.47,H:6.79,N:6.83
(13)	227.5～228.1	C:72.94,H:6.35,N:6.30	C:72.82,H:6.21,N:6.45
(14)	316.9～317.5 (分解)	C:78.17,H:6.81,N:7.01	C:78.23,H:6.63,N:6.88
(15)	153.8～154.5	C:69.34,H:7.56	C:69.27,H:7.66
(16)	127.3～128.2	C:65.64,H:7.51,N:6.96	C:65.71,H:7.39,N:6.81

## 【0306】

製造例1及び製造例7～15で得られた式(7)～(16)の化合物のIRとNMRチャートとをそれぞれ図1～図20に示す。

## 【0307】

## &lt;比較製造例&gt;

前記製造例1と同様の実験において、塩基触媒であるトリエチルアミンを使用しない以外は実施例1と同様に実験を行なったところ、反応は進行せず目的物質は得られなかった。

## 【0308】

次に、本発明における電子移動剤の電子移動度測定の実施例を比較例とともに説明する。

## 【0309】

## &lt;実施例1&gt;

オキシチタニウムフタロシアニン5gをガラスビーズ50mlと共にペイント

シェイカーで100時間乾式粉碎する。次に、*n*-プロパノール50mlと、ポリビニルブチラール5gを加え、1時間湿式ミリングする。更に、溶媒としてメチルエチルケトン100mlを加え、10時間分散する。得られた分散液を、アルミニウム付きPETフィルム上にバーコーターで塗布し乾燥し、0.5μmの厚みの電荷発生層を形成した。

### 【0310】

次いで前述の式(7)に示す化合物8重量部、ポリカーボネート10重量部とテトラヒドロフラン(THF)100重量部からなる塗工液を調整し、バーコーターで塗布し、80℃で1時間乾燥し膜厚10μmの電荷移動層を形成した。電荷移動層上に対向電極として金を0.04μm(40nm)蒸着し、膜に電界を与え、レーザーパルス光を照射して、電子移動度を測定した。

### 【0311】

#### <実施例2~10>

実施例1の式(7)の化合物を式(8)~式(16)の化合物にかえて電子移動度を測定した。

### 【0312】

#### (比較例1)

前記実施例1と同様の薄膜において、式(7)で表される化合物を式(24)で表される化合物に代えた以外は実施例1と同様に電子移動度を測定した。

#### (測定結果)

電界 $3.0 \times 10^5 \text{ V/cm}$ における電子移動度を表Fに示す。

### 【0313】

【表 4 3】

表F 実施例及び比較例の電子移動度測定結果

例	電子移動度( $\text{cm}^2/\text{V}\cdot\text{sec}$ )
実施例 1	$2 \times 10^{-8}$
実施例 2	$6 \times 10^{-8}$
実施例 3	$1 \times 10^{-8}$
実施例 4	$1 \times 10^{-8}$
実施例 5	$6 \times 10^{-8}$
実施例 6	$3 \times 10^{-8}$
実施例 7	$6 \times 10^{-8}$
実施例 8	$1 \times 10^{-8}$
実施例 9	$1 \times 10^{-8}$
実施例 10	$4 \times 10^{-8}$
比較例 1	$1 \times 10^{-9}$

## 【0314】

上記表Fから明らかなように、実施例1～10は電子移動度がそれぞれ $1 \times 10^{-8}$  ( $\text{cm}^2/\text{V}\cdot\text{sec}$ ) 以上であり、比較例1の場合（電子移動度 $1 \times 10^{-9}$  ( $\text{cm}^2/\text{V}\cdot\text{sec}$ ））と比べて電子移動度が高いことが確認された。

## 【0315】

以下に本発明における応用実施例を比較例とともに説明するが、本発明はその要旨を超えない限り、下記実施例により限定されるものでない。

## 有機エレクトロルミネッセンス素子の作成例

## ＜応用実施例1＞

洗浄したITO電極付きガラス板上に、前述の式(7)に示す化合物とトリス(8-ハイドロキシキノリノール)アルミニウム錯体とを3：1の比率でクロロホルムに溶解させ、スピンコーティングにより膜厚 $0.07\mu\text{m}$ の発光体層を得た。さらにその上に、マグネシウムと銀を10：1で混合した合金を蒸着して、膜厚 $0.2\mu\text{m}$ の電極を形成して図23に示す有機エレクトロルミネッセンス素

子を得た。

### 【0316】

#### <応用実施例 2 ～ 10>

応用実施例 1 の化学式 (7) の化合物を化学式 (8) ～ 化学式 (16) の化合物にかえて、有機エレクトロルミネッセンス素子を得た。応用実施例 1 ～ 10 で得られた有機エレクトロルミネッセンス素子の直流電流 5 V における発光量を表 G に示す。

### 【0317】

#### 【表 4 4】

表 G 応用実施例 1 ～ 10 の有機 EL 素子発光量

例	発光量 (cd/m <sup>2</sup> )
応用実施例 1	100
応用実施例 2	120
応用実施例 3	60
応用実施例 4	60
応用実施例 5	110
応用実施例 6	90
応用実施例 7	100
応用実施例 8	80
応用実施例 9	80
応用実施例 10	100

### 【0318】

上記表 G から明らかなように、応用実施例 1 ～ 10 では発光量がそれぞれ 60 (cd/m<sup>2</sup>) 以上であり、十分な発光量が確認された。

### 【0319】

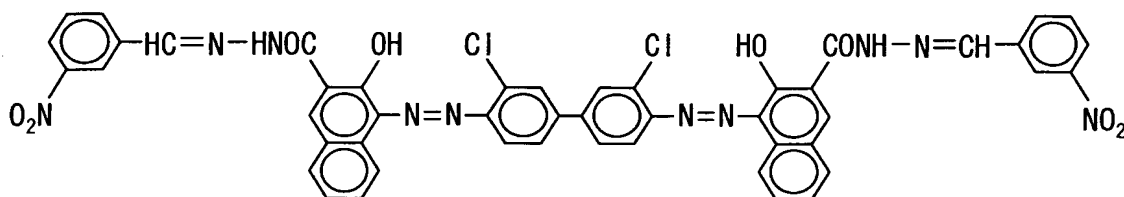
複写機用電子写真感光体の作成例

#### <応用実施例 11>

電荷発生物質であり、下記化学式 (26)

### 【0320】

【化159】



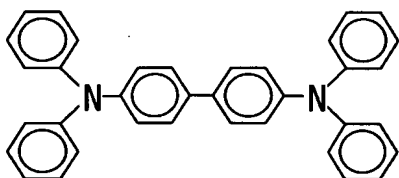
..... 化学式 (26)

【0321】

に示すジスアゾ顔料1重量部に対して、バインダー樹脂であるポリカーボネート10重量部と、溶媒であるTHF80重量部とを混合し、サンドミルで10時間混練分散し、更に電荷移動物質として、下記化学式(27)

【0322】

【化160】



..... 化学式 (27)

【0323】

に示すトリフェニルジアミン化合物9重量部と式(7)に示す化合物2重量部を溶解して塗工液を調製した。そして、この塗工液を用いて導電性支持体1であるアルミニウム製ドラム上に浸漬塗布し、80℃で1時間乾燥して膜厚20μmの電荷発生と電荷移動を兼ねた感光層4を形成し、単層型電子写真感光体12を製造した。

【0324】

<応用実施例12~20>

応用実施例11の化学式(7)の化合物を化学式(8)~化学式(16)の化合物にかえて、電子写真感光体を得た。

【0325】

## (比較例 2)

前記応用実施例 11 と同様の電子写真感光体において、式(7)で表される化合物を式(24)で表される化合物に代えた以外は実施例 11 と同様に単層型電子写真感光体を作製した。

## 【0326】

プリンター用電子写真感光体の作成例

## &lt;応用実施例 21&gt;

オキシチタニウムフタロシアニン 5 g をガラスビーズ 50 ml と共にペイントシェイカーで 100 時間乾式粉碎する。次に、n-プロパノール 50 ml と、ポリビニルブチラール 5 g を加え、1 時間湿式ミリングする。更に、溶媒としてメチルエチルケトン 100 ml を加え、10 時間分散する。得られた分散液を導電性支持体 1 であるアルミニウム製ドラム上に浸漬塗布し、乾燥して 0.2  $\mu$ m の厚みの電荷発生層 2 を形成した。

## 【0327】

次いで、前述の式(7)に示す化合物 8 重量部、ポリカーボネート 10 重量部とテトラヒドロフラン(THF) 100 重量部からなる塗工液を調製し、この塗工液に電荷発生層 2 を形成したドラムを浸漬塗布し、80℃で 1 時間乾燥し膜厚 20  $\mu$ m の電荷移動層 3 を形成して積層型電子写真感光体を製造した。

## 【0328】

## &lt;応用実施例 22～30&gt;

応用実施例 21 の化学式(7)の化合物を化学式(8)～(16)の化合物にかえて、電子写真感光体を得た。

## 【0329】

## (比較例 3)

前記応用実施例 21 と同様の電子写真感光体において、式(7)で表される化合物を式(24)で表される化合物に代えた以外は実施例 21 と同様に積層型電子写真感光体を作製した。

## 【0330】

## &lt;応用実施例 31&gt;



電荷発生物質としてオキシチタニウムフタロシアニン 1 重量部とバインダー樹脂としてポリカーボネート 10 重量部に THF 80 重量部を溶媒としてサンドミルで 10 時間混練分散し、更に電荷移動物質として式(26)に示すトリフェニルジアミン化合物 9 重量部と式(7)に示す化合物 2 重量部を溶解して塗工液を調製した。そして、この塗工液を用いて導電性支持体 1 であるアルミニウム製ドラム上に浸漬塗布し、80℃で 1 時間乾燥して膜厚 20  $\mu$ m の電荷発生と電荷移動を兼ねた感光層 4 を形成し、単層型電子写真感光体を製造した。

#### 【0331】

##### <応用実施例 32～40>

応用実施例 31 の化学式(7)の化合物を化学式(8)～化学式(16)の化合物にかえて、電子写真感光体を得た。

#### 【0332】

##### (比較例 4)

前記応用実施例 31 と同様の電子写真感光体において、式(7)で表される化合物を式(24)で表される化合物に代えた以外は実施例 31 と同様に単層型電子写真感光体を作製した。

#### 【0333】

##### <応用実施例 41>

電荷発生物質としてオキシチタニウムフタロシアニン 1 重量部とバインダー樹脂としてポリカーボネート 10 重量部に THF 80 重量部を溶媒としてサンドミルで 10 時間混練分散し、更に電荷移動物質として式(26)に示すトリフェニルジアミン化合物 1 重量部と式(7)に示す化合物 9 重量部を溶解して塗工液を調製した。そして、この塗工液を用いて導電性支持体 1 であるアルミニウム製ドラム上に浸漬塗布し、80℃で 1 時間乾燥して膜厚 20  $\mu$ m の電荷発生と電荷移動を兼ねた感光層 4 を形成し、単層型電子写真感光体を製造した。

#### 【0334】

##### <応用実施例 42～50>

応用実施例 41 の化学式(7)の化合物を式(8)～(16)の化合物にかえて、電子写真感光体を得た。

**【0335】**

(比較例5)

前記応用実施例41と同様の電子写真感光体において、式(7)で表される化合物を式(24)で表される化合物に代えた以外は実施例41と同様に単層型電子写真感光体を作製した。

**【0336】**

(測定条件)

コロナ放電電流が $17\mu\text{A}$ となるようにコロナ放電器を設定し、前記応用実施例11～40、比較例2～4において製造した電子写真感光体を暗所にてコロナ放電により正帯電させて帯電電位を測定した。その後、白色光で露光し、各電子写真感光体の表面電位が $700\text{V}$ から $350\text{V}$ に半減する露光量 $E/50(1\text{ux}\cdot\text{sec})$ を測定した。この半減露光量は、電子写真感光体の感度を示す値である。

**【0337】**

(測定結果)

前記応用実施例11～20及び比較例2の測定結果は、下記表Hの通りである。

**【0338】**

【表 45】

表H 応用実施例11～20及び比較例2の帯電電位及び半減露光量

例	帯電電位 (V)	半減露光量 (Lux・sec)
応用実施例11	640	3.4
応用実施例12	670	2.9
応用実施例13	620	4.8
応用実施例14	630	4.7
応用実施例15	660	3.3
応用実施例16	650	4.0
応用実施例17	650	3.6
応用実施例18	630	4.2
応用実施例19	620	4.3
応用実施例20	640	3.9
比較例2	580	6.1

## 【0339】

前記応用実施例11～20及び比較例2は正帯電複写機用単層分散型感光体における結果である。応用実施例と比較例を対比すると、化学式(7)～(16)の電子移動物質を用いる事により、式(24)の電子移動物質よりも高感度な感光体を得られることがわかる。また帯電性も良くなる。

## 【0340】

前記応用実施例21～30及び比較例3の測定結果は、表Iの通りである。

## 【0341】

【表 4 6】

表 I 応用実施例 2 1 ～ 3 0 及び比較例 3 の帯電電位及び半減露光量

例	帯電電位 (V)	半減露光量 (Lux・sec)
応用実施例 2 1	5 8 0	1 . 8
応用実施例 2 2	5 9 0	1 . 4
応用実施例 2 3	5 4 0	2 . 3
応用実施例 2 4	5 6 0	2 . 0
応用実施例 2 5	5 7 0	1 . 5
応用実施例 2 6	5 5 0	1 . 9
応用実施例 2 7	5 7 0	1 . 6
応用実施例 2 8	5 5 0	1 . 9
応用実施例 2 9	5 8 0	2 . 1
応用実施例 3 0	5 6 0	1 . 7
比較例 3	5 5 0	2 . 8

## 【 0 3 4 2 】

応用実施例 2 1 ～ 3 0 及び比較例 3 は正帯電プリンター用積層型感光体における結果である。応用実施例と比較例を対比すると、化学式 ( 7 ) ～ ( 1 6 ) の電子移動物質を用いる事により、式 ( 2 4 ) の電子移動物質よりも高感度な感光体が得られることがわかる。

前記応用実施例 3 1 ～ 4 0 及び比較例 4 の測定結果は、表 J の通りである。

## 【 0 3 4 3 】

【表 47】

表J 応用実施例31～40及び比較例4の帯電電位及び半減露光量

例	帯電電位 (V)	半減露光量 (Lux·sec)
応用実施例 31	530	2.0
応用実施例 32	550	1.8
応用実施例 33	520	2.3
応用実施例 34	550	2.2
応用実施例 35	570	1.7
応用実施例 36	540	1.8
応用実施例 37	530	1.9
応用実施例 38	540	2.2
応用実施例 39	550	2.1
応用実施例 40	560	2.0
比較例 4	540	3.0

## 【0344】

応用実施例 31～40 及び比較例 4 は正帯電プリンター用単層分散感光体における結果である。応用実施例と比較例を対比すると、化学式 (7)～(16) の電子移動物質を用いる事により、式 (24) の電子移動物質よりも高感度な感光体が得られることがわかる。

## 【0345】

次にコロナ放電電流が  $17\mu\text{A}$  となるようにコロナ放電器を設定し、前記応用実施例 41～50、比較例 5 において製造した電子写真感光体を暗所にてコロナ放電により負帯電させて帯電電位を測定した。その後、白色光で露光し、各電子写真感光体の表面電位が  $-700\text{V}$  から  $-350\text{V}$  に半減する露光量  $E/50$  (Lux·sec) を測定した。この結果を表 K に示す。半減露光量は、電子写真感光体の感度を示す値である。

## 【0346】

【表 48】

表K 応用実施例 41～50 及び比較例 5 の帯電電位及び半減露光量

例	帯電電位 (V)	半減露光量 (Lux・sec)
応用実施例 41	-600	1.5
応用実施例 42	-590	1.2
応用実施例 43	-610	2.0
応用実施例 44	-600	2.1
応用実施例 45	-580	1.3
応用実施例 46	-600	1.6
応用実施例 47	-590	1.2
応用実施例 48	-610	1.9
応用実施例 49	-600	2.0
応用実施例 50	-570	1.8
比較例 5	-620	3.5

## 【0347】

応用実施例 41～50 及び比較例 5 は負帯電プリンター用単層分散感光体における結果である。応用実施例と比較例を対比すると、化学式(7)～(16)の電子移動物質を用いる事により、化学式(24)の電子移動物質よりも高感度な感光体を得られることがわかる。

## 【0348】

以上、前記有機薄膜を感光層に用いた電子写真感光体について説明したが、本発明はそれに限定されるものではない。例えば、前記有機薄膜を、感光層と導電性支持基体との間に形成する下引き層に用いた電子写真感光体も本発明に含まれる。下引き層に用いる有機薄膜には、適度な導電性が求められるが、前記一般式(1)で表される化合物を含有する有機薄膜は電子移動性が高いので、感度の高い電子写真感光体を得ることができる。

## 【0349】

また、前記有機薄膜を感光層表面に形成する保護膜に用いることもできる。要するに、本発明は、前記一般式(1)で表される化合物を含有する有機薄膜が形

成された電子写真感光体を広く含むものである。

### 【0350】

以上は、ベンゾキノン化合物と活性メチレンを有する化合物とを塩基触媒のみが存在する条件で反応させる場合について説明したが、本発明はこれに限定されるものではない。本発明は塩基触媒と共に目的物が溶解しにくい溶媒を用いて反応を行うことで、目的物の収率を向上させることができるものである。尚、本発明で目的物とは、前記一般式(1)～(6)で表される化合物を示す。

塩基触媒のみで反応を行った場合、原料であるベンゾキノン化合物と活性メチレンを有する化合物とが反応して得られた目的物に、更に活性メチレンを有する化合物が付加し副生成物を生成する副反応が起こってしまう。そこで、目的物が溶解しにくい溶媒(不活性溶媒)を塩基触媒と共に用いてベンゾキノン化合物と活性メチレンとを反応させ、更に、反応してきた目的物が溶解しにくい溶媒によって反応系である溶媒中から結晶として析出させ反応系から除去する事により、さらに活性メチレンを有する化合物が目的物に付加してしまう事を防ぐことができる。

### 【0351】

即ち、目的物が溶解しにくい溶媒中で反応が進行することで、副反応が抑制され、その結果目的物の収率が向上すると考えられる。

そのような溶媒としては、メタノール、エタノール、ブタノールなどのアルコール溶媒、ヘプタン、ヘキサンなどの飽和脂肪族炭化水素、又は、水などを用いることが好ましい。これらは単独で用いても2種以上混合して用いても良い。これらのなかでも、コスト面や目的物に対する溶解能力の低さを考慮すると、水、メタノール、エタノール、ブタノールが特に好ましい。

また、塩基触媒と共に用いることができる溶媒(不活性溶媒)は、アルコール、飽和脂肪族炭化水素、水に限定されるものではない。目的物1gを溶解させるのに50ml以上を必要とする溶媒であれば種々のものを用いることができ、それらの溶媒は単独で用いても良いし、2種類以上を混合したものを用いても良い。

以下に本発明による化合物の製造方法について詳細に説明する。

## 【0352】

## &lt;製造例16&gt;

ベンゾキノン化合物である2,6-ジ-tert-ブチルベンゾキノン0.44g(2ミリモル)と活性メチレンを有する化合物であるメチルフェニルピラゾロン0.35g(2ミリモル)に塩基触媒のピリジン0.5mlと水4mlとを加え攪拌下、45℃で5時間反応させた。その後、反応混合物を水4mlに添加し濾過する。得られた結晶をメタノール8mlにて洗浄し、クロロホルム、メタノール混合液にて再結晶し0.63gの2,6-ジ-tert-ブチル-4-(3-メチル-1-フェニル-5-オキソ-4-ピラゾリリデン)-2,5-シクロヘキサジエン-1-オンを得た。収率は84%であった。

## 【0353】

## &lt;製造例17&gt;

製造例16でのピリジンを1mlで水を2mlに変えた以外は、製造例16と同じ操作で行ったところ収率は65%であった。

## 【0354】

## &lt;製造例18&gt;

製造例16でのピリジンを1mlで水を4mlに変えた以外は、製造例16と同じ操作で行ったところ収率は75%であった。

## 【0355】

## &lt;製造例19&gt;

製造例16での水をメタノールに変えた以外は、製造例16と同じ操作で行ったところ収率は62%であった。

## 【0356】

## &lt;製造例20&gt;

製造例16での水をヘキサンに変えた以外は、製造例16と同じ操作で行ったところ収率は51%であった。

## 【0357】

## &lt;製造例21&gt;

製造例16での水をクロロホルム2mlに変えた以外は、製造例16と同じ操



作で行ったところ収率は34%であった。

【0358】

<製造例22>

製造例16での水をトルエン2mlに変えた以外は、製造例16と同じ操作で行ったところ収率は35%であった。

製造例16～製造例20と製造例7を比較すると、同じ化合物(8)で表される化合物を製造することはできるが、製造例7が目的物の収率が32%であるのに対し、製造例16～製造例20は84%、65%、75%、62%、51%と収率が向上していることがわかる。また、製造例21及び製造例22のようにクロロホルムやトルエンを用いた場合では、製造例7と同等程度の収率であり、収率向上の効果が得られていないことがわかる。

【0359】

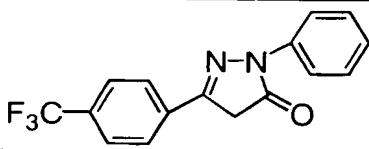
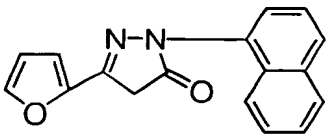
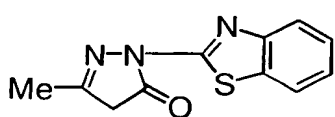
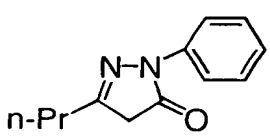
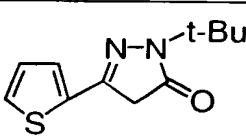
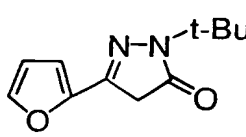
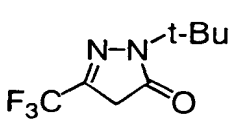
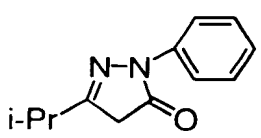
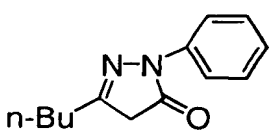
<製造例23～37>

次に活性メチレンを有する化合物を変えた時の、反応温度、反応時間及び収率を表L(1)及び表L(2)に、各製造例で得られた式(29)～(43)の化合物の構造式及び名称を表M(1)乃至表M(3)に示す。

【0360】

【表 49】

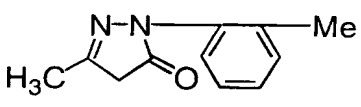
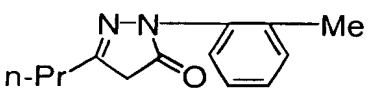
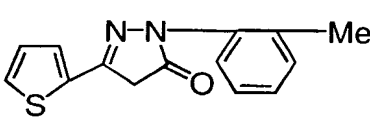
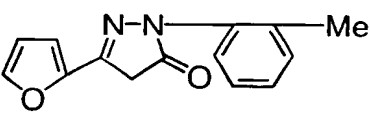
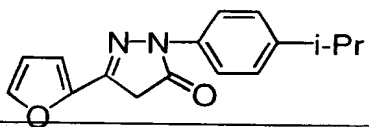
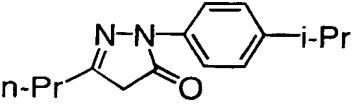
表 L (1) 製造例 23～31 の合成例

製造例	活性メチレンを有する化合物	反応温度
		反応時間
		収率 (%)
23		25
		20時間
		49
24		25
		16時間
		20
25		20
		20時間
		64
26		25
		20時間
		50
27		50
		6時間
		5
28		50
		6時間
		2
29		70
		3時間
		9
30		25
		20時間
		44
31		25
		20時間
		39

【0361】

【表 50】

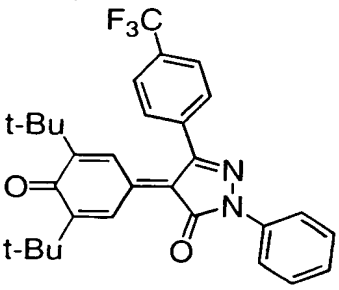
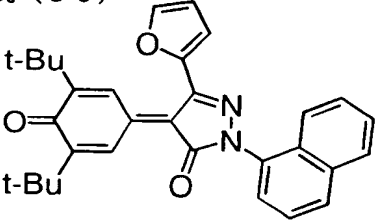
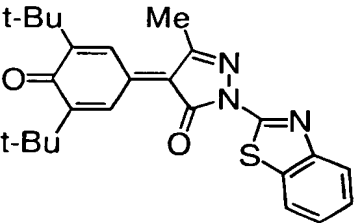
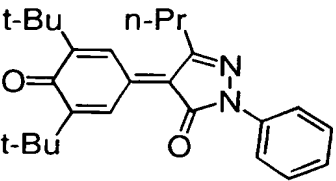
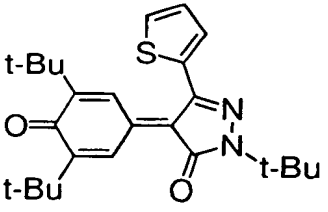
表 L (2) 製造例 32~37 の合成例

製造例	活性メチレンを有する化合物	反応温度
		反応時間
		収率 (%)
32		25
		20時間
		30
33		25
		20時間
		49
34		25
		20時間
		28
35		25
		20時間
		38
36		25
		20時間
		41
37		25
		20時間
		36

【0362】

【表 5 1】

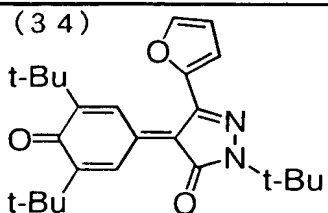
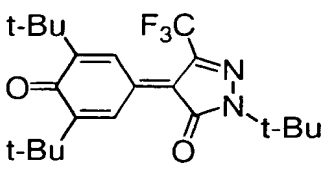
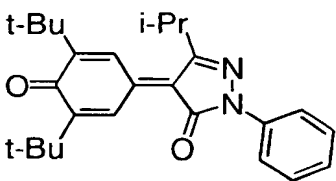
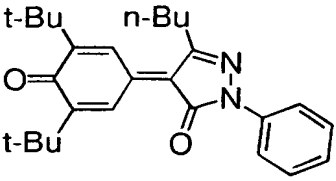
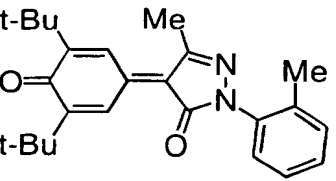
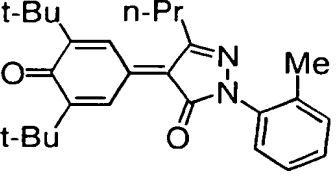
表M (1) 製造例 23～27で合成された化合物

製造例	化合物	化合物名
23	式 (29) 	2, 6-ジ-tert-ブチル-4-[1-フェニル-3-(4-トリフルオロメチルフェニル)-5-オキソ-4-ピラゾリリデン]-2, 5-シクロヘキサジエン-1-オン
24	式 (30) 	2, 6-ジ-tert-ブチル-4-[3-(2-フラニル)-1-(1-ナフチル)-5-オキソ-4-ピラゾリリデン]-2, 5-シクロヘキサジエン-1-オン
25	式 (31) 	2, 6-ジ-tert-ブチル-4-[1-(2-ベンゾチアゾリル)-3-メチル-5-オキソ-4-ピラゾリリデン]-2, 5-シクロヘキサジエン-1-オン
26	式 (32) 	2, 6-ジ-tert-ブチル-4-(1-フェニル-3-プロピル-5-オキソ-4-ピラゾリリデン)-2, 5-シクロヘキサジエン-1-オン
27	式 (33) 	2, 6-ジ-tert-ブチル-4-[1-tert-ブチル-3-(2-チエニル)-5-オキソ-4-ピラゾリリデン]-2, 5-シクロヘキサジエン-1-オン

【0363】

【表 5 2】

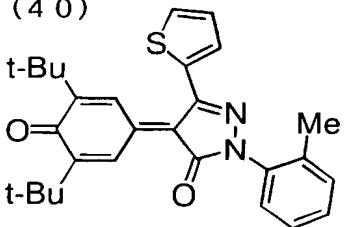
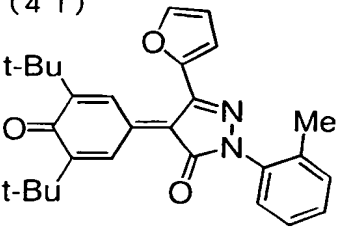
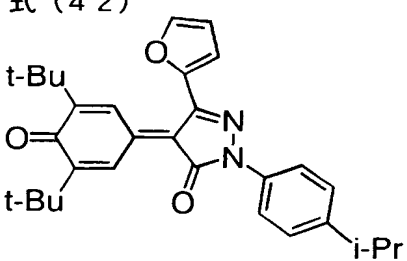
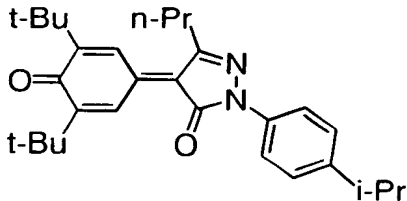
表M (2) 製造例 28~33で合成された化合物

製造例	化合物	化合物名
28	式 (34) 	2, 6-ジ-tert-ブチル-4-[1-tert-ブチル-3-(2-フラニル)-5-オキソ-4-ピラゾリリデン]-2, 5-シクロヘキサジエン-1-オン
29	式 (35) 	2, 6-ジ-tert-ブチル-4-(1-tert-ブチル-3-トリフルオロメチル-5-オキソ-4-ピラゾリリデン)-2, 5-シクロヘキサジエン-1-オン
30	式 (36) 	2, 6-ジ-tert-ブチル-4-(3-iso-プロピル-1-フェニル-5-オキソ-4-ピラゾリリデン)-2, 5-シクロヘキサジエン-1-オン
31	式 (37) 	2, 6-ジ-tert-ブチル-4-(3-ブチル-1-フェニル-5-オキソ-4-ピラゾリリデン)-2, 5-シクロヘキサジエン-1-オン
32	式 (38) 	2, 6-ジ-tert-ブチル-4-[3-メチル-1-(2-メチルフェニル)-5-オキソ-4-ピラゾリリデン]-2, 5-シクロヘキサジエン-1-オン
33	式 (39) 	2, 6-ジ-tert-ブチル-4-[1-(2-メチルフェニル)-3-プロピル-5-オキソ-4-ピラゾリリデン]-2, 5-シクロヘキサジエン-1-オン

【0364】

【表 5 3】

表M(3) 製造例 34~37で合成された化合物

製造例	化合物	化合物名
34	式(40) 	2,6-ジ-tert-ブチル-4-[1-(2-メチルフェニル)-3-(2-チエニル)-5-オキソ-4-ピラゾリリデン]-2,5-シクロヘキサジエン-1-オン
35	式(41) 	2,6-ジ-tert-ブチル-4-[3-(2-フラニル)-1-(2-メチルフェニル)-5-オキソ-4-ピラゾリリデン]-2,5-シクロヘキサジエン-1-オン
36	式(42) 	2,6-ジ-tert-ブチル-4-[3-(2-フラニル)-1-(4-iso-プロピルフェニル)-5-オキソ-4-ピラゾリリデン]-2,5-シクロヘキサジエン-1-オン
37	式(43) 	2,6-ジ-tert-ブチル-4-[3-プロピル-1-(4-iso-プロピルフェニル)-5-オキソ-4-ピラゾリリデン]-2,5-シクロヘキサジエン-1-オン

## 【0365】

製造例 23~37で得られた式(29)~(43)の化合物の融点と元素分析値を表Nに示す。

## 【0366】

【表 5 4】

表N 化合物(29)～(43)の融点及び元素分析値

化合物	融点 (°C)	元素分析値	
		計算値 (%)	実測値 (%)
(29)	261.0～262.9	C:71.13, H:5.77, N:5.53	C:71.34, H:5.42, N:5.32
(30)	175.0～175.5	C:77.80, H:6.32, N:5.85	C:77.67, H:6.12, N:5.65
(31)	260.9～261.7	C:69.26, H:6.28, N:9.69	C:69.07, H:6.48, N:9.71
(32)	155.4～156.1	C:77.19, H:7.97, N:6.92	C:77.23, H:7.82, N:6.67
(33)	179.9～180.6	C:70.72, H:7.60, N:6.60	C:70.58, H:7.48, N:6.55
(34)	153.7～154.4	C:73.50, H:7.90, N:6.86	C:73.24, H:7.95, N:6.77
(35)	130.7～131.4	C:64.37, H:7.12, N:6.82	C:64.49, H:7.02, N:6.93
(36)	166.4～167.1	C:77.19, H:7.97, N:6.92	C:77.35, H:7.86, N:6.83
(37)	149.6～150.2	C:77.48, H:8.19, N:6.69	C:77.63, H:8.35, N:6.65
(38)	68.0～70.0	C:76.89, H:7.74, N:7.17	C:76.65, H:7.57, N:7.01
(39)	87.1～87.9	C:77.48, H:8.19, N:6.69	C:77.62, H:8.34, N:6.82
(40)	170.0～170.7	C:73.33, H:6.59, N:6.11	C:73.37, H:6.67, N:6.34
(41)	154.0～154.5	C:75.99, H:6.83, N:6.33	C:75.82, H:6.97, N:6.51
(42)	157.8～158.5	C:76.57, H:7.28, N:5.95	C:76.77, H:7.12, N:6.01
(43)	75.0～78.0	C:77.99, H:8.58, N:6.27	C:78.12, H:8.45, N:6.34

## 【0367】

製造例23～37で得られた式(29)～(43)の化合物のIRとNMRチャートとをそれぞれ図24～図53に示す。

次に、本発明における電子移動剤の電子移動度測定の実施例を比較例とともに説明する。

## 【0368】

## &lt;実施例11～25&gt;

上記実施例1の式(7)の化合物を式(29)～式(43)の化合物にかえて電子移動度を測定した。

(測定結果)

電界  $3.0 \times 10^5 \text{ V/cm}$  における電子移動度を下記表Oに示す。

【0369】

【表55】

表O 実施例11～25及び比較例1の電子移動度測定結果

例	電子移動度( $\text{cm}^2/\text{V}\cdot\text{sec}$ )
実施例11	$1 \times 10^{-8}$
実施例12	$3 \times 10^{-8}$
実施例13	$3 \times 10^{-8}$
実施例14	$1 \times 10^{-7}$
実施例15	$5 \times 10^{-8}$
実施例16	$2 \times 10^{-7}$
実施例17	$1 \times 10^{-8}$
実施例18	$1 \times 10^{-7}$
実施例19	$1 \times 10^{-7}$
実施例20	$8 \times 10^{-8}$
実施例21	$6 \times 10^{-8}$
実施例22	$2 \times 10^{-7}$
実施例23	$2 \times 10^{-7}$
実施例24	$4 \times 10^{-8}$
実施例25	$2 \times 10^{-7}$
比較例1	$1 \times 10^{-9}$

【0370】

上記表Oから明らかなように、実施例11～25は電子移動度がそれぞれ  $1 \times 10^{-8}$  ( $\text{cm}^2/\text{V}\cdot\text{sec}$ ) 以上であり、比較例1の場合（電子移動度  $1 \times 10^{-9}$  ( $\text{cm}^2/\text{V}\cdot\text{sec}$ ））と比べて電子移動度が高いことが確認された。

【0371】

プリンター用電子写真感光体の作成例

<応用実施例51～65>

応用実施例1の化学式(7)の化合物を化学式(29)～化学式(43)の化合物にかえて、有機エレクトロルミネッセンス素子を得た。応用実施例51～6



5で得られた有機エレクトロルミネッセンス素子の直流電流 5 V における発光量を表 P に示す。

【0372】

【表 56】

表 P 応用実施例 51～65 の有機 EL 素子発光量

例	発光量 (cd/m <sup>2</sup> )
応用実施例 51	60
応用実施例 52	100
応用実施例 53	90
応用実施例 54	140
応用実施例 55	110
応用実施例 56	150
応用実施例 57	80
応用実施例 58	130
応用実施例 59	150
応用実施例 60	130
応用実施例 61	120
応用実施例 62	130
応用実施例 63	120
応用実施例 64	70
応用実施例 65	130

【0373】

上記表 P から明らかなように、応用実施例 51～65 では発光量がそれぞれ 60 (cd/m<sup>2</sup>) 以上であり、十分な発光量が確認された。

【0374】

複写機用電子写真感光体の作成例

< 応用実施例 66～80 >

応用実施例 11 の化学式 (7) の化合物を化学式 (29)～化学式 (43) の化合物にかえて、電子写真感光体を得た。

【0375】

## プリンター用電子写真感光体の作成例

## &lt; 応用実施例 8 1 ~ 9 5 &gt;

応用実施例 2 1 の化学式 ( 7 ) の化合物を化学式 ( 2 9 ) ~ ( 4 3 ) の化合物にかえて、電子写真感光体を得た。

## 【 0 3 7 6 】

## &lt; 応用実施例 9 6 ~ 1 1 0 &gt;

応用実施例 3 1 の化学式 ( 7 ) の化合物を化学式 ( 2 9 ) ~ 化学式 ( 4 3 ) の化合物にかえて、電子写真感光体を得た。

## &lt; 応用実施例 1 1 1 ~ 1 2 5 &gt;

応用実施例 4 1 の化学式 ( 7 ) の化合物を化学式 ( 2 9 ) ~ 化学式 ( 4 3 ) の化合物にかえて、電子写真感光体を得た。

## 【 0 3 7 7 】

( 測定条件 )

コロナ放電電流が  $17\ \mu\text{A}$  となるようにコロナ放電器を設定し、前記応用実施例 6 6 ~ 1 1 0 において製造した電子写真感光体を暗所にてコロナ放電により正帯電させて帯電電位を測定した。その後、白色光で露光し、各電子写真感光体の表面電位が  $700\text{V}$  から  $350\text{V}$  に半減する露光量  $E/50(\text{l u x} \cdot \text{s e c})$  を測定した。この半減露光量は電子写真感光体の感度を示す値である。

( 測定結果 )

前記応用実施例 6 6 ~ 8 0 の測定結果を前記比較例 2 の測定結果と共に下記表 Q に記載する。

## 【 0 3 7 8 】

【表 5 7】

表Q 応用実施例 6 6 ～ 8 0 及び応用比較例 2 の帯電電位  
及び半減露光量

例	帯電電位 (V)	半減露光量 (Lux・sec)
応用実施例 6 6	6 7 0	4. 5
応用実施例 6 7	6 4 0	4. 6
応用実施例 6 8	6 3 0	4. 3
応用実施例 6 9	6 5 0	2. 4
応用実施例 7 0	6 4 0	3. 8
応用実施例 7 1	6 2 0	2. 3
応用実施例 7 2	6 6 0	4. 7
応用実施例 7 3	6 5 0	2. 7
応用実施例 7 4	6 7 0	2. 6
応用実施例 7 5	6 8 0	2. 9
応用実施例 7 6	6 3 0	3. 9
応用実施例 7 7	6 4 0	3. 7
応用実施例 7 8	6 7 0	3. 5
応用実施例 7 9	6 6 0	3. 9
応用実施例 8 0	6 4 0	2. 8
応用比較例 2	5 8 0	6. 1

## 【0 3 7 9】

前記応用実施例 6 6 ～ 8 0 及び比較例 2 は正帯電複写機用単層分散型感光体における結果である。応用実施例と比較例を対比すると、化学式 (2 9) ～ (4 3) の電子移動物質を用いる事により、式 (2 4) の電子移動物質よりも高感度な感光体が得られることがわかる。また帯電性も良くなる。

前記応用実施例 8 1 ～ 9 5 の測定結果を前記比較例 3 の測定結果と共に下記表 R に記載する。

## 【0 3 8 0】

【表 58】

表 R 応用実施例 81～95 及び応用比較例 3 の帯電電位  
及び半減露光量

例	帯電電位 (V)	半減露光量 (Lux・sec)
応用実施例 81	600	2.4
応用実施例 82	570	2.3
応用実施例 83	560	2.2
応用実施例 84	570	1.3
応用実施例 85	560	1.6
応用実施例 86	590	1.2
応用実施例 87	570	2.1
応用実施例 88	580	1.4
応用実施例 89	570	1.3
応用実施例 90	590	1.5
応用実施例 91	600	1.9
応用実施例 92	560	1.7
応用実施例 93	580	1.9
応用実施例 94	580	2.3
応用実施例 95	570	1.6
応用比較例 3	550	2.8

## 【0381】

応用実施例 81～95 及び比較例 3 は正帯電プリンター用積層型感光体における結果である。応用実施例と比較例とを対比すると、化学式 (29)～(43) の電子移動物質を用いる事により、式 (24) の電子移動物質よりも高感度な感光体が得られることがわかる。

前記応用実施例 96～110 の測定結果を前記比較例 4 の測定結果と共に下記表 S に記載する。

## 【0382】

## 【表 5 9】

表 S 応用実施例 9 6 ~ 1 1 0 及び応用比較例 4 の帯電電位  
及び半減露光量

例	帯電電位 (V)	半減露光量 (Lux·sec)
応用実施例 9 6	5 6 0	2. 2
応用実施例 9 7	5 4 0	2. 1
応用実施例 9 8	5 3 0	2. 2
応用実施例 9 9	5 5 0	1. 6
応用実施例 1 0 0	5 3 0	2. 2
応用実施例 1 0 1	5 4 0	1. 5
応用実施例 1 0 2	5 2 0	2. 3
応用実施例 1 0 3	5 5 0	1. 7
応用実施例 1 0 4	5 3 0	1. 6
応用実施例 1 0 5	5 7 0	1. 8
応用実施例 1 0 6	5 6 0	2. 0
応用実施例 1 0 7	5 3 0	1. 9
応用実施例 1 0 8	5 7 0	1. 9
応用実施例 1 0 9	5 6 0	2. 2
応用実施例 1 1 0	5 4 0	1. 6
応用比較例 4	5 4 0	3. 0

## 【0 3 8 3】

応用実施例 9 6 ~ 1 1 0 及び比較例 4 は正帯電プリンター用単層分散感光体における結果である。応用実施例と比較例を対比すると、化学式 (2 9) ~ (4 3) の電子移動物質を用いる事により、式 (2 4) の電子移動物質よりも高感度な感光体が得られることがわかる。

## 【0 3 8 4】

次にコロナ放電電流が  $17 \mu A$  となるようにコロナ放電器を設定し、前記応用実施例 1 1 1 ~ 1 2 5 において製造した電子写真感光体を暗所にてコロナ放電により負帯電させて帯電電位を測定した。その後、白色光で露光し、各電子写真感光体の表面電位が  $-700 V$  から  $-350 V$  に半減する露光量  $E/50$  (l u

x・sec) を測定した。これらの結果を表 T に示す。半減露光量は、電子写真感光体の感度を示す値である。

【0 3 8 5】

【表 6 0】

表 T 応用実施例 1 1 1 ~ 1 2 5 及び応用比較例 5 の帯電電位  
及び半減露光量

例	帯電電位 (V)	半減露光量 (Lux・sec)
応用実施例 1 1 1	- 6 1 0	2. 1
応用実施例 1 1 2	- 5 8 0	1. 9
応用実施例 1 1 3	- 5 8 0	1. 7
応用実施例 1 1 4	- 5 9 0	1. 1
応用実施例 1 1 5	- 5 7 0	1. 6
応用実施例 1 1 6	- 5 8 0	1. 0
応用実施例 1 1 7	- 5 6 0	2. 2
応用実施例 1 1 8	- 6 0 0	1. 2
応用実施例 1 1 9	- 5 8 0	1. 1
応用実施例 1 2 0	- 6 2 0	1. 3
応用実施例 1 2 1	- 6 1 0	1. 7
応用実施例 1 2 2	- 5 8 0	1. 5
応用実施例 1 2 3	- 6 0 0	1. 4
応用実施例 1 2 4	- 5 9 0	1. 9
応用実施例 1 2 5	- 5 7 0	1. 3
応用比較例 5	- 6 2 0	3. 5

【0 3 8 6】

応用実施例 1 1 1 ~ 1 2 5 及び比較例 5 は負帯電プリンター用単層分散感光体における結果である。応用実施例と比較例を対比すると、化学式 (2 9) ~ (4 3) の電子移動物質を用いる事により、化学式 (2 4) の電子移動物質よりも高感度な感光体が得られることがわかる。

【発明の効果】

以上述べたように本発明の電子移動化合物は、キノン環と活性メチレン基を有する環状構造の 2 つの環構造が二重結合で結ばれている構造で、分子骨格が大き

く分子内の電子移動距離が長いことから電子が分子内を移動しやすく高い電子移動性を示し、着色性が弱く光の吸収を起しにくく、分子構造が非対称であるため樹脂相溶性が高い新規な分子骨格の化合物である。

#### 【0387】

また、塩基触媒を用いた電子移動化合物の容易な製造方法を提供することができた。そして、電子移動化合物を樹脂と混ぜることにより優れた性質を有する電子移動剤を得ることができる。さらに、電子移動化合物を用いた電子写真感光体は、高感度の感光層を得ることができる。

#### 【0388】

また、電子移動化合物はバインダー樹脂との相溶性がよいので、感光層中に多量に、且つ均一に分散させることができ、この時に着色性が弱いので電荷発生物質に到達する入射光を妨げる事がなく、感度の高い電子写真感光体を得ることができる。この電子写真感光体は、正帯電方式および負帯電方式のいずれにも用いることができるものである。

#### 【0389】

さらにまた、本発明の電子移動化合物は有機エレクトロルミネッセンス素子の電子移動物質としても応用可能である。なお、本発明は、機能性材料の要求特性に合わせて置換基を選択し、電子移動化合物の分子構造を設計できるものである。

#### 【図面の簡単な説明】

【図1】化学式(7)で表される化合物のIRスペクトル図

【図2】化学式(7)で表される化合物の $^1\text{H}$ -NMRスペクトル図

【図3】化学式(8)で表される化合物のIRスペクトル図

【図4】化学式(8)で表される化合物の $^1\text{H}$ -NMRスペクトル図

【図5】化学式(9)で表される化合物のIRスペクトル図

【図6】化学式(9)で表される化合物の $^1\text{H}$ -NMRスペクトル図

【図7】化学式(10)で表される化合物のIRスペクトル図

【図8】化学式(10)で表される化合物の $^1\text{H}$ -NMRスペクトル図

【図9】化学式(11)で表される化合物のIRスペクトル図

【図 10】 化学式 (11) で表される化合物の $^1\text{H}$ -NMR スペクトル

図

【図 11】 化学式 (12) で表される化合物の IR スペクトル図

【図 12】 化学式 (12) で表される化合物の $^1\text{H}$ -NMR スペクトル

図

【図 13】 化学式 (13) で表される化合物の IR スペクトル図

【図 14】 化学式 (13) で表される化合物の $^1\text{H}$ -NMR スペクトル

図

【図 15】 化学式 (14) で表される化合物の IR スペクトル図

【図 16】 化学式 (14) で表される化合物の $^1\text{H}$ -NMR スペクトル

図

【図 17】 化学式 (15) で表される化合物の IR スペクトル図

【図 18】 化学式 (15) で表される化合物の $^1\text{H}$ -NMR スペクトル

図

【図 19】 化学式 (16) で表される化合物の IR スペクトル図

【図 20】 化学式 (16) で表される化合物の $^1\text{H}$ -NMR スペクトル

図

【図 21】 積層型電子写真感光体の一例を示す断面図

【図 22】 単層型電子写真感光体の一例を示す断面図

【図 23】 有機エレクトロルミネッセンス素子の一例を示す断面図

【図 24】 化学式 (29) で表される化合物の IR スペクトル図

【図 25】 化学式 (29) で表される化合物の $^1\text{H}$ -NMR スペクトル図

【図 26】 化学式 (30) で表される化合物の IR スペクトル図

【図 27】 化学式 (30) で表される化合物の $^1\text{H}$ -NMR スペクトル図

【図 28】 化学式 (31) で表される化合物の IR スペクトル図

【図 29】 化学式 (31) で表される化合物の $^1\text{H}$ -NMR スペクトル図

【図 30】 化学式 (32) で表される化合物の IR スペクトル図

【図 31】 化学式 (32) で表される化合物の $^1\text{H}$ -NMR スペクトル図

【図 32】 化学式 (33) で表される化合物の IR スペクトル図



【図 3 3】 化学式 (3 3) で表される化合物の $^1\text{H}$ -NMR スペクトル

図

【図 3 4】 化学式 (3 4) で表される化合物の IR スペクトル図

【図 3 5】 化学式 (3 4) で表される化合物の $^1\text{H}$ -NMR スペクトル

図

【図 3 6】 化学式 (3 5) で表される化合物の IR スペクトル図

【図 3 7】 化学式 (3 5) で表される化合物の $^1\text{H}$ -NMR スペクトル

図

【図 3 8】 化学式 (3 6) で表される化合物の IR スペクトル図

【図 3 9】 化学式 (3 6) で表される化合物の $^1\text{H}$ -NMR スペクトル

図

【図 4 0】 化学式 (3 7) で表される化合物の IR スペクトル図

【図 4 1】 化学式 (3 7) で表される化合物の $^1\text{H}$ -NMR スペクトル

図

【図 4 2】 化学式 (3 8) で表される化合物の IR スペクトル図

【図 4 3】 化学式 (3 8) で表される化合物の $^1\text{H}$ -NMR スペクトル

図

【図 4 4】 化学式 (3 9) で表される化合物の IR スペクトル図

【図 4 5】 化学式 (3 9) で表される化合物の $^1\text{H}$ -NMR スペクトル

図

【図 4 6】 化学式 (4 0) で表される化合物の IR スペクトル図

【図 4 7】 化学式 (4 0) で表される化合物の $^1\text{H}$ -NMR スペクトル

図

【図 4 8】 化学式 (4 1) で表される化合物の IR スペクトル図

【図 4 9】 化学式 (4 1) で表される化合物の $^1\text{H}$ -NMR スペクトル

図

【図 5 0】 化学式 (4 2) で表される化合物の IR スペクトル図

【図 5 1】 化学式 (4 2) で表される化合物の $^1\text{H}$ -NMR スペクトル

図

【図 5 2】 化学式 (4 3) で表される化合物の IR スペクトル図

【図 5 3】 化学式 (4 3) で表される化合物の  $^1\text{H}$ -NMR スペクトル

図

【符号の説明】

1 ……導電性支持体    2 ……電荷発生層    3 ……電荷移動層    4 ……感光層

1 1、1 2 ……電子写真感光体

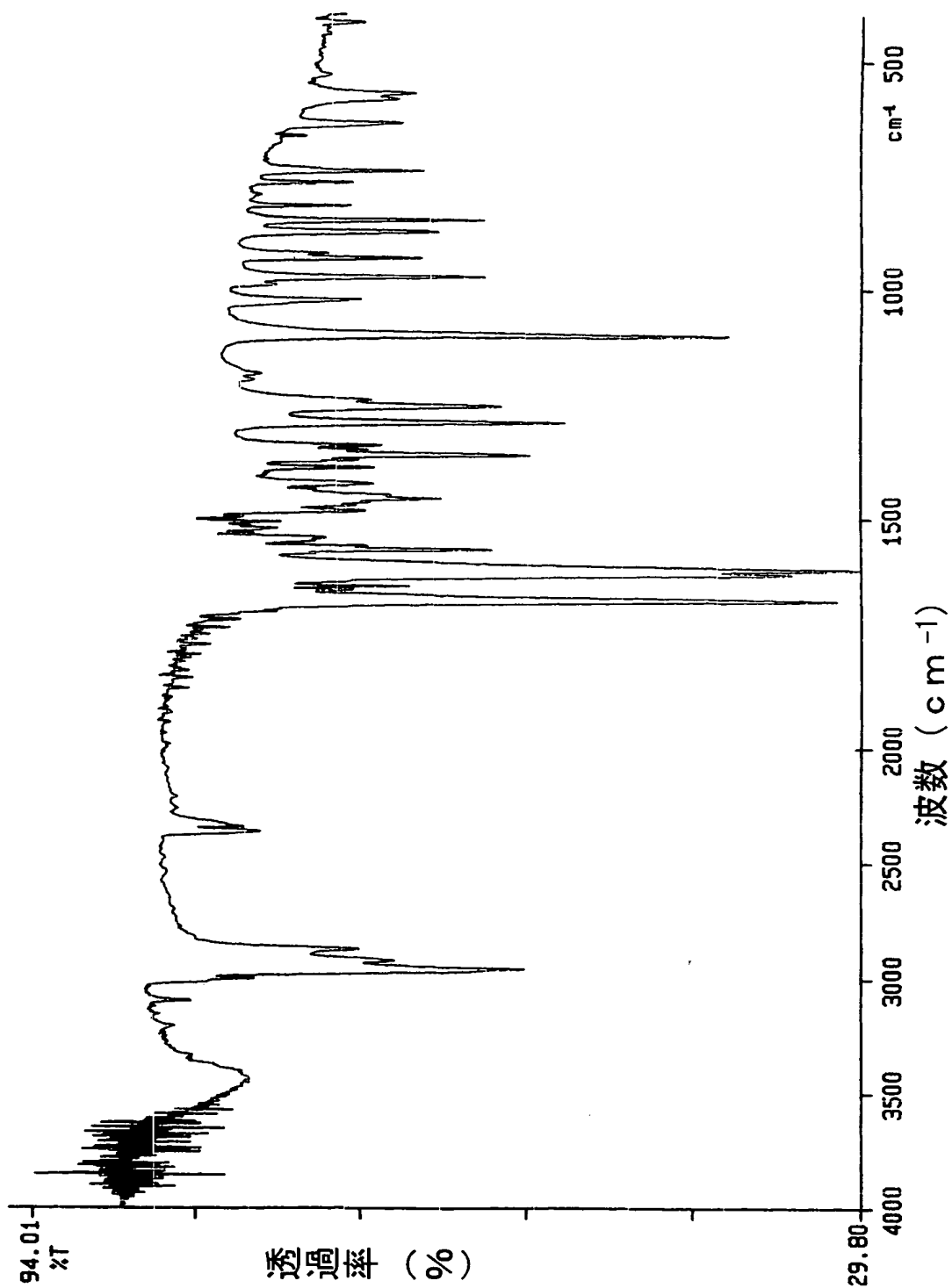
2 1 ……有機エレクトロルミネッセンス素子    2 2 ……第一の電極

2 5 ……発光体層    2 6 ……第二の電極

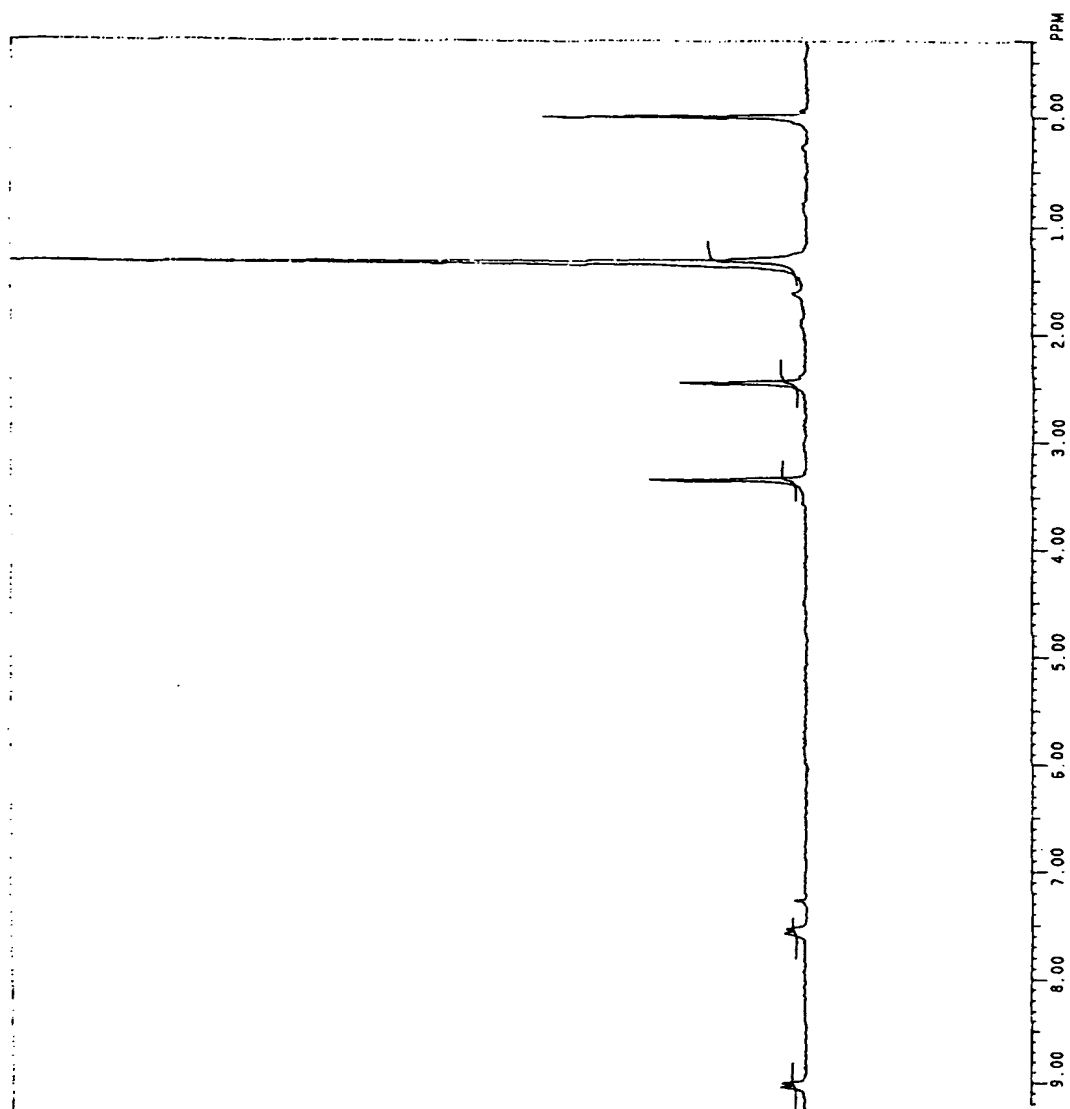
【書類名】

図面

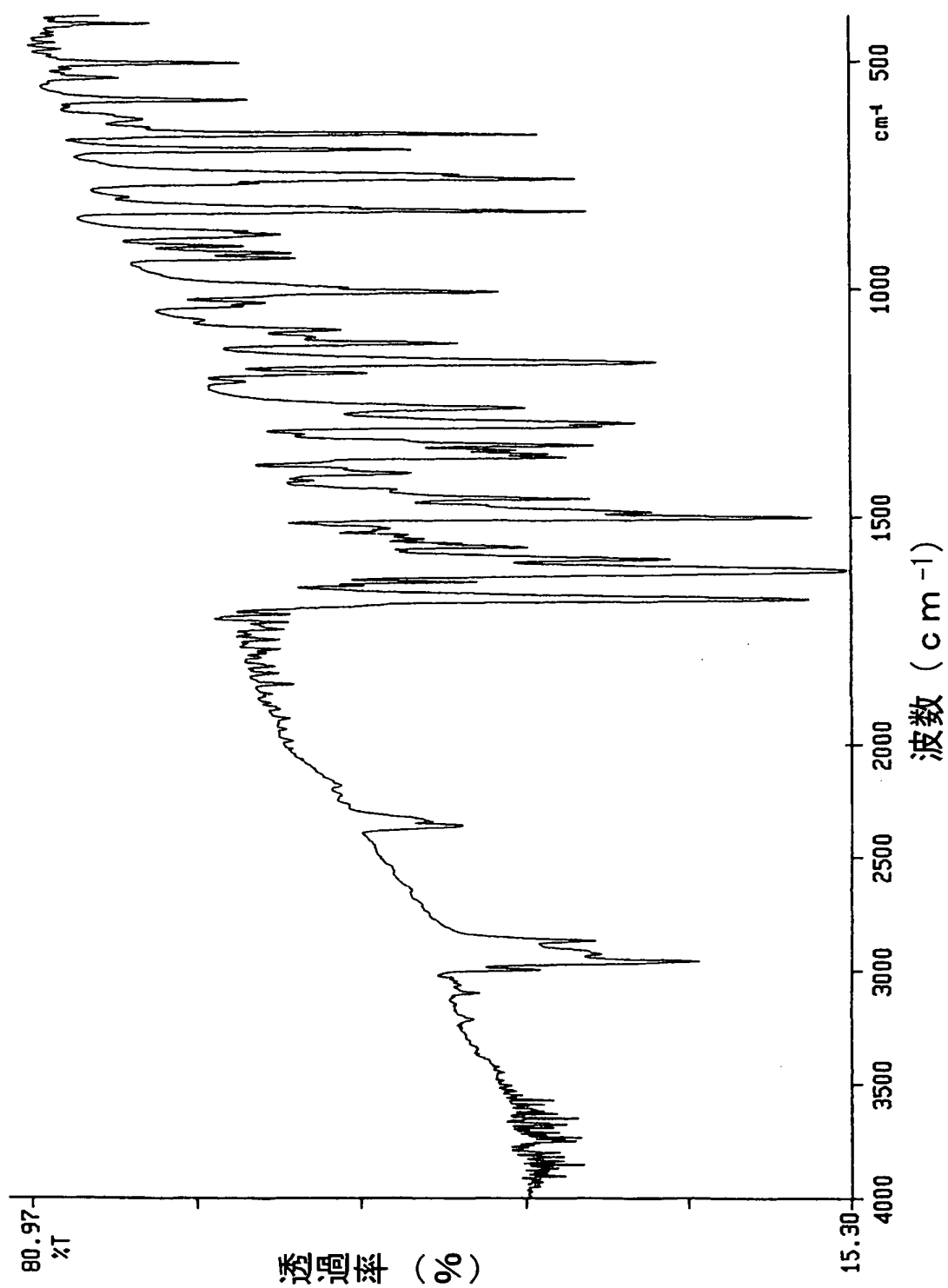
【図 1】



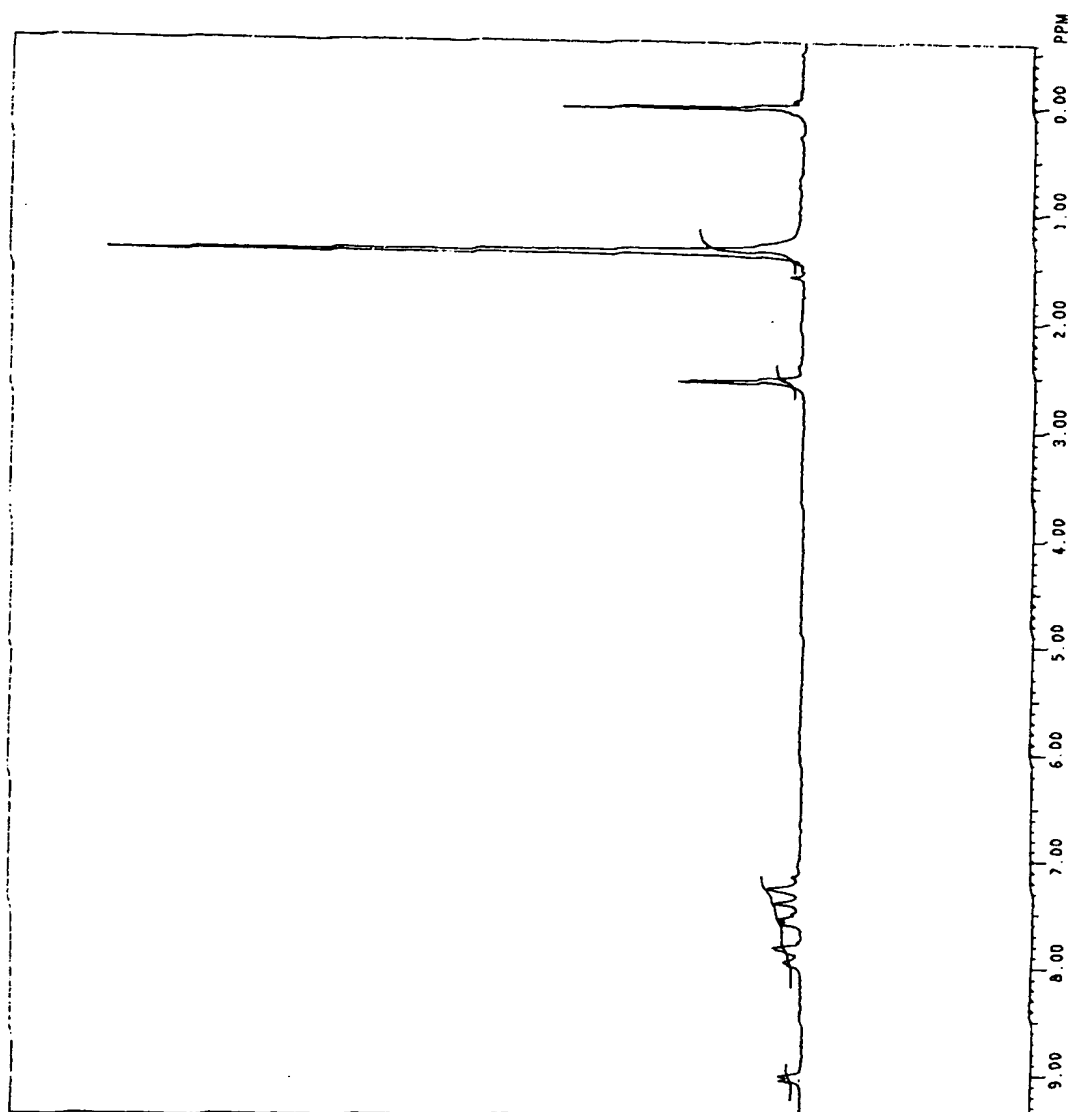
【図 2】



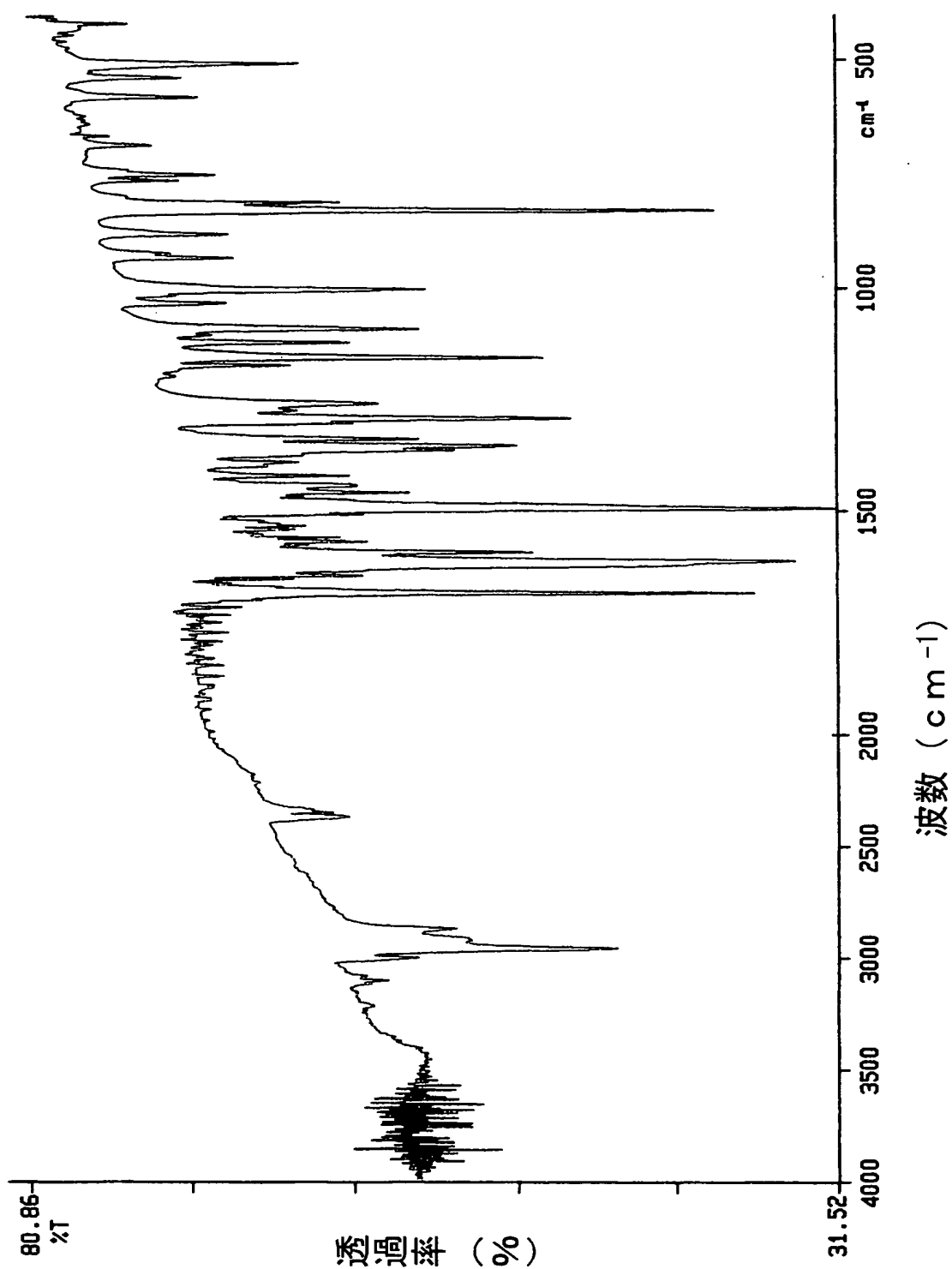
【図 3】



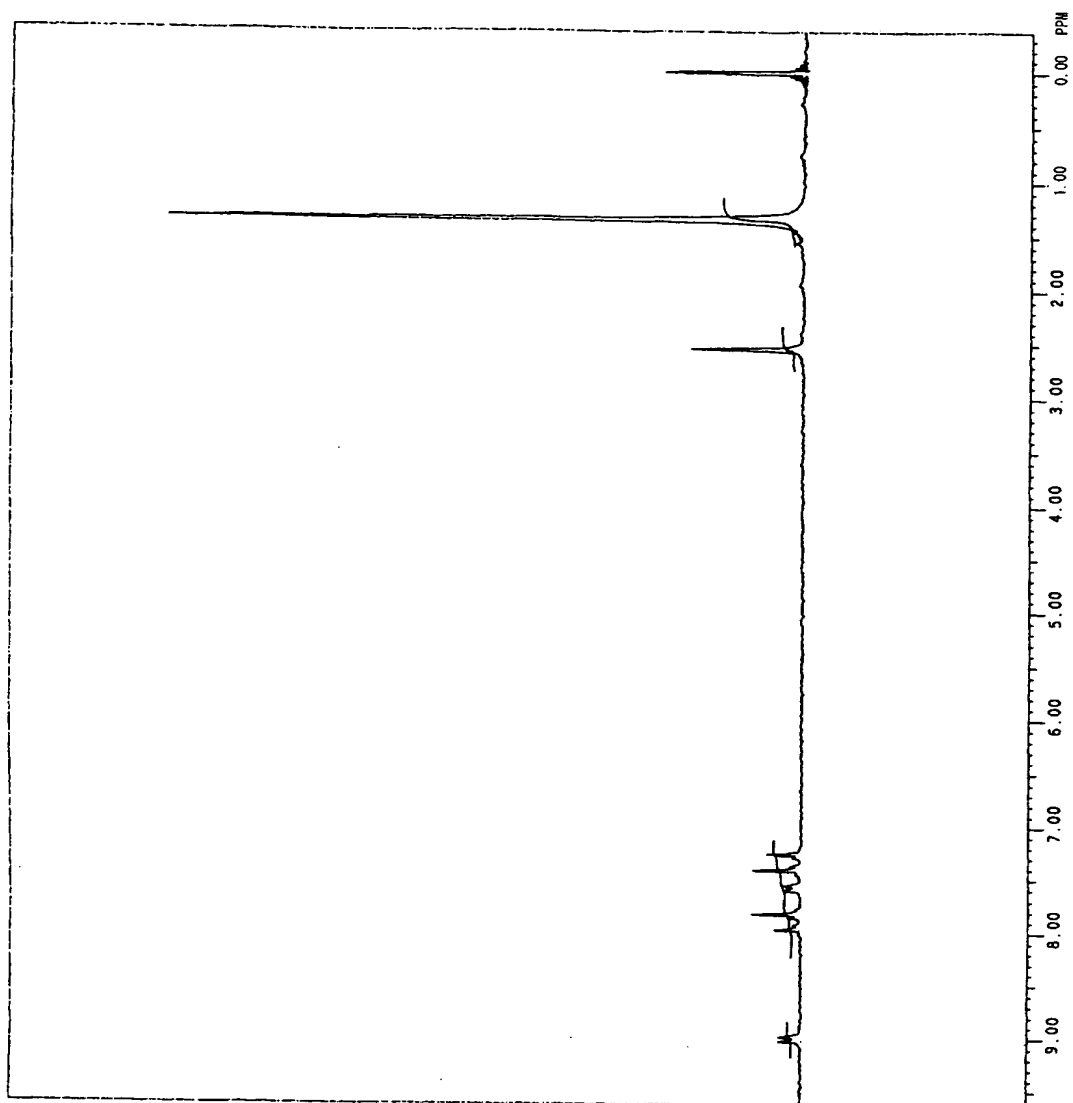
【図 4】



【図 5】

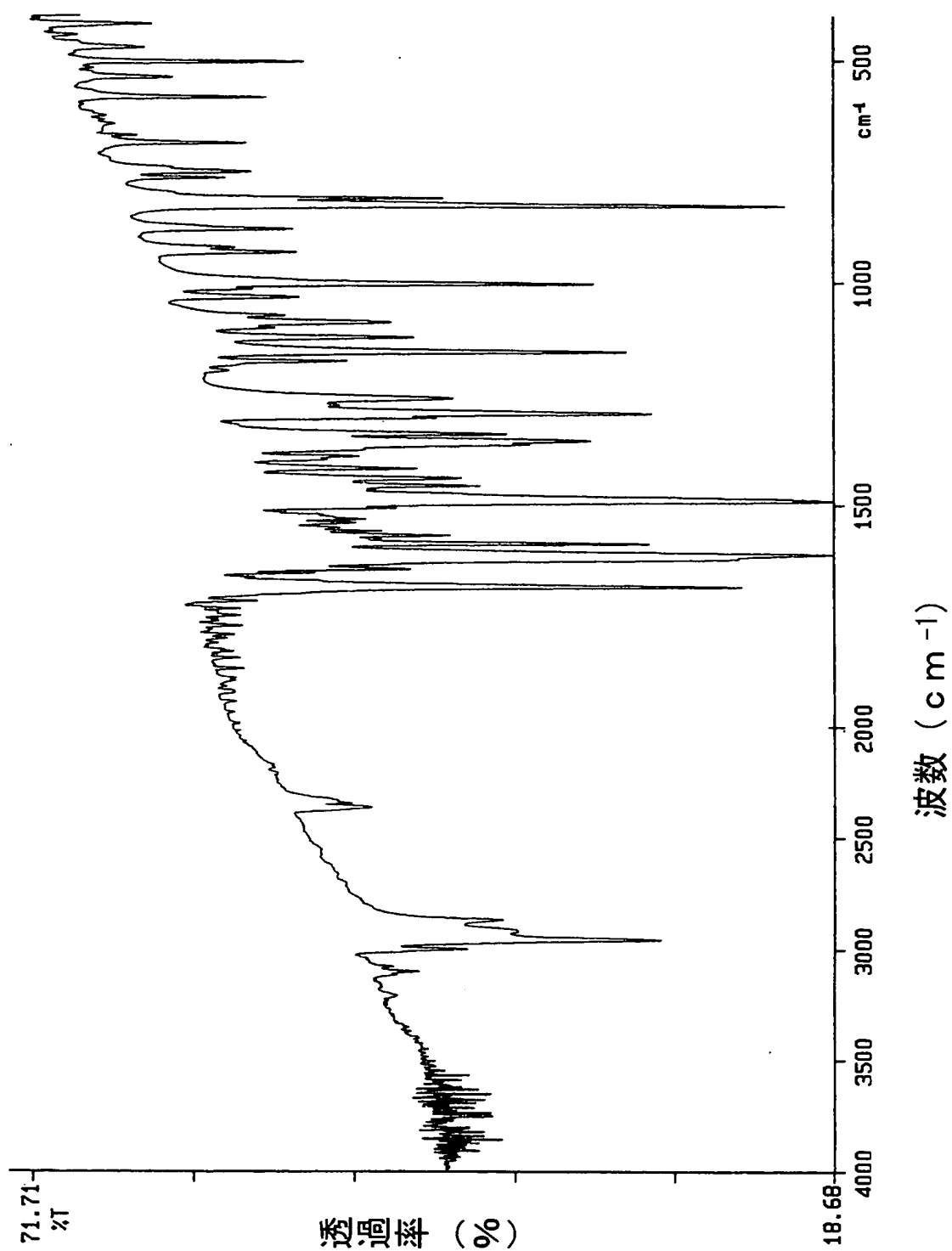


【図 6】

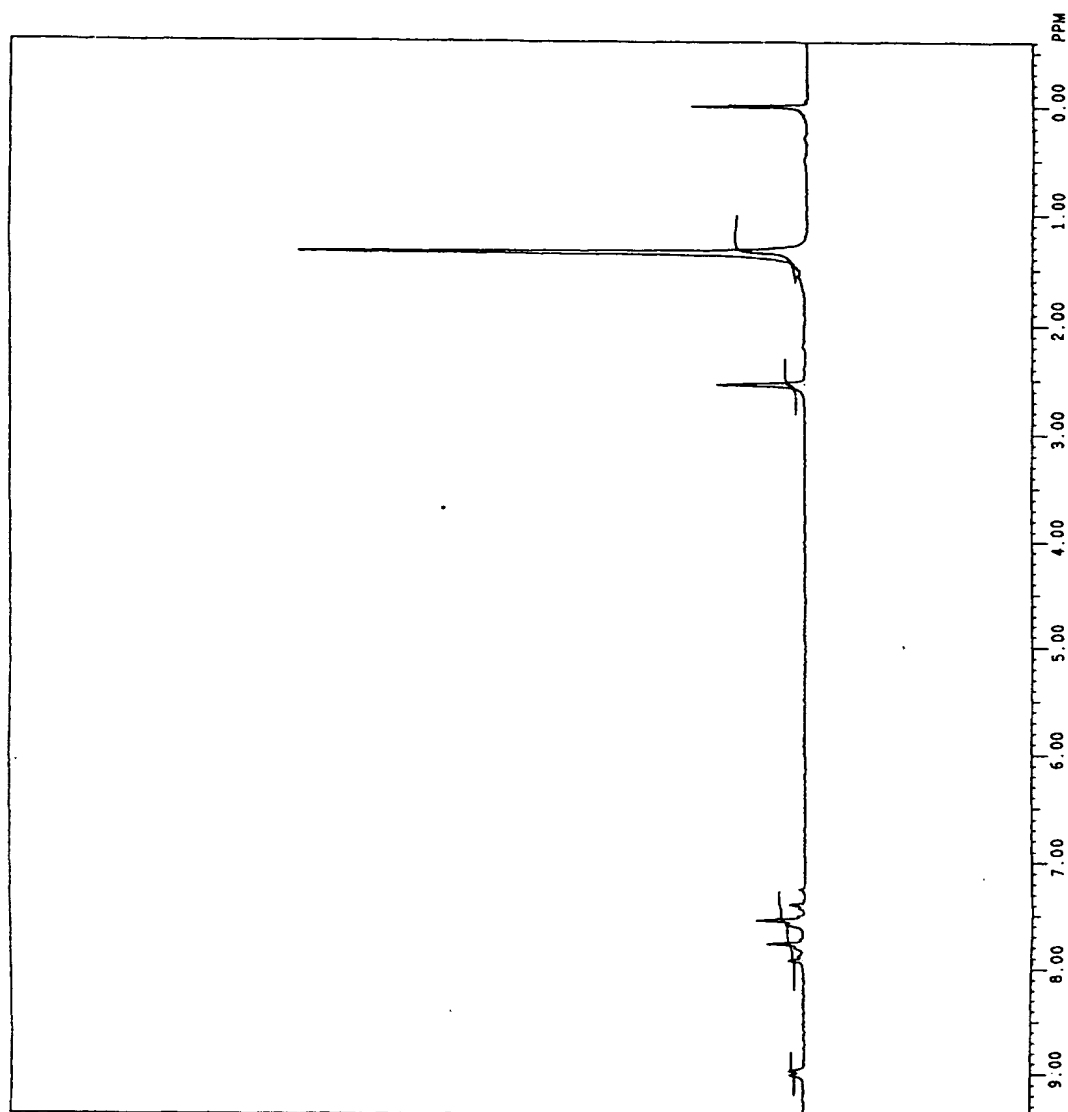




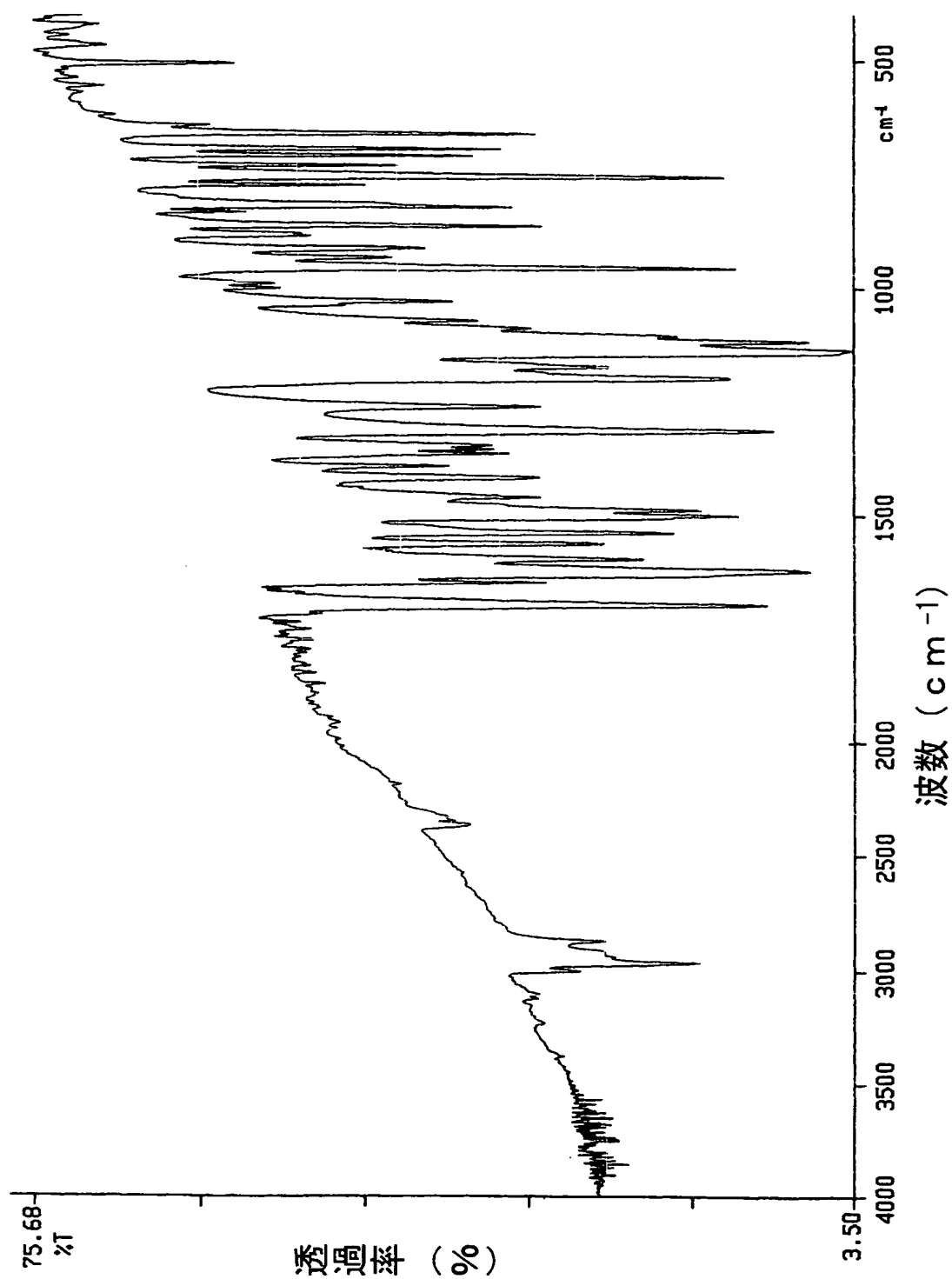
【図 7】



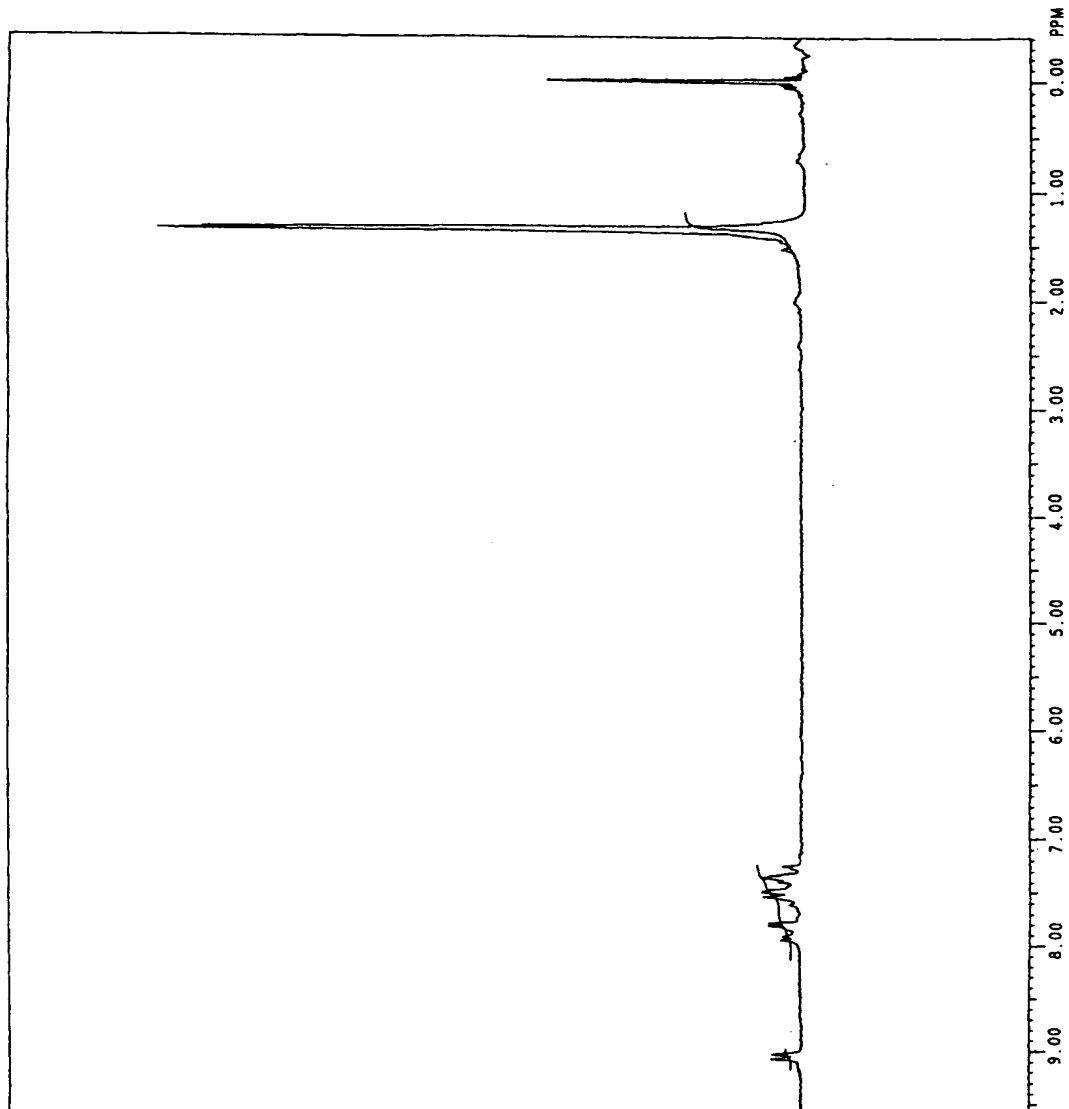
【図 8】



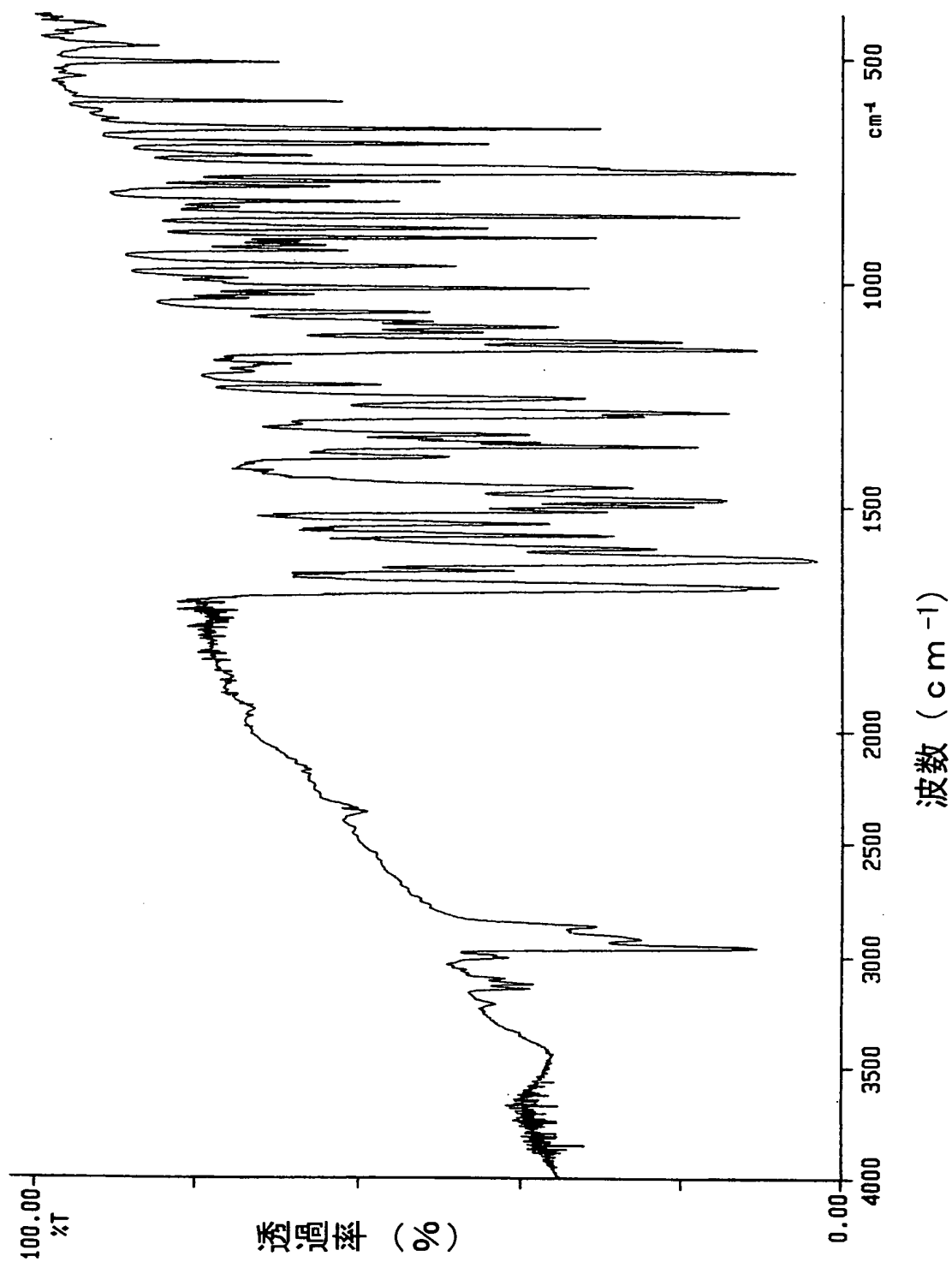
【図 9】



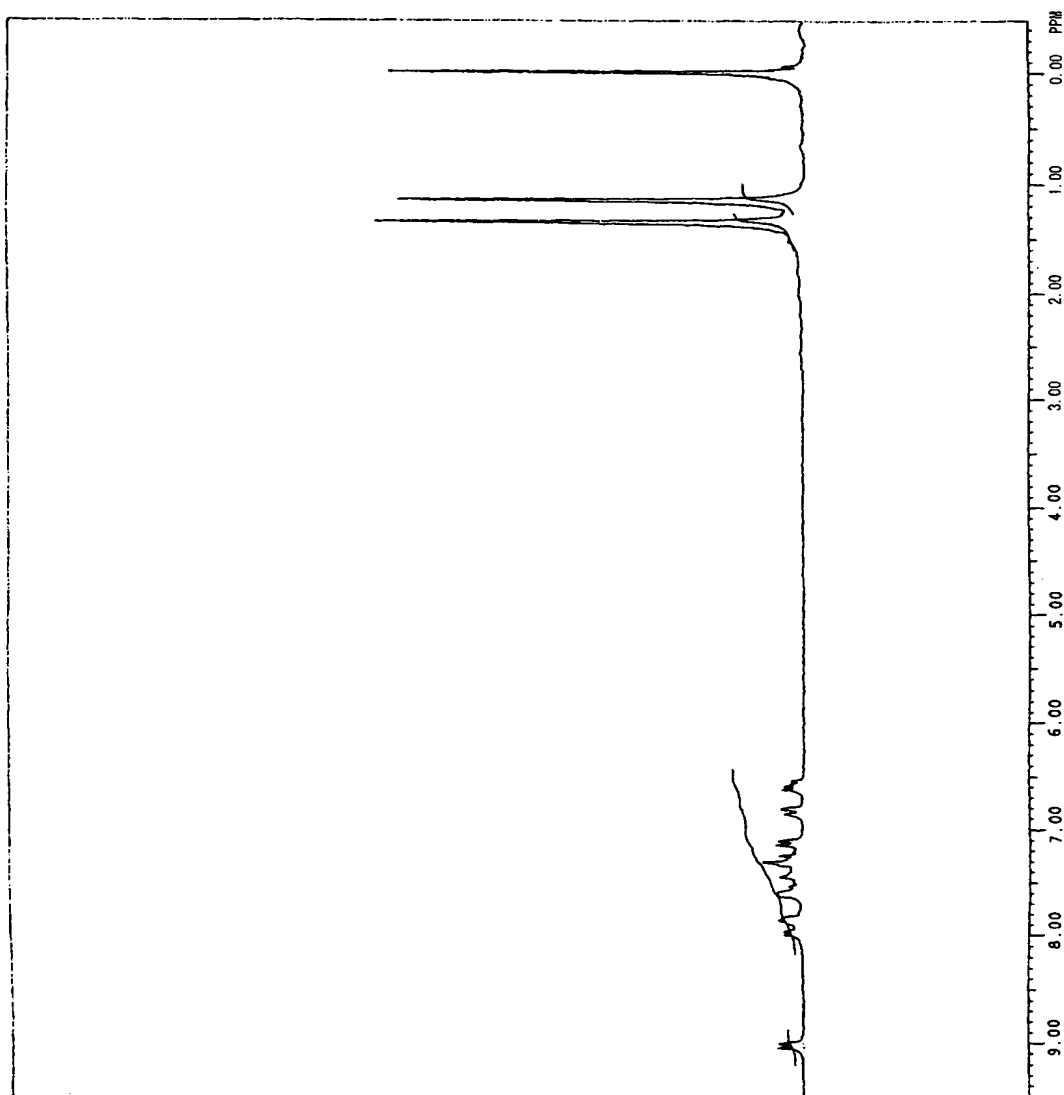
【図 10】



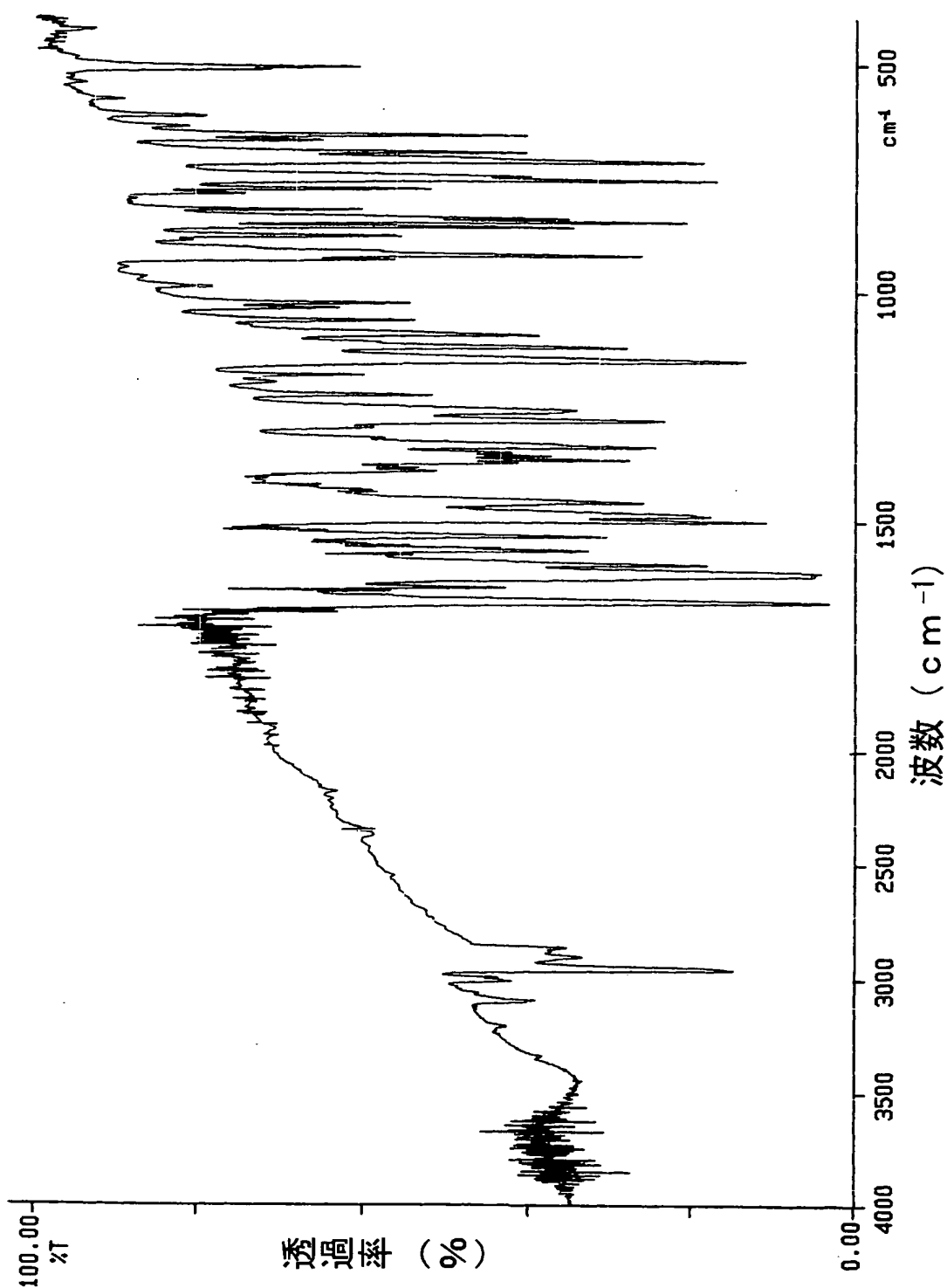
【図 11】



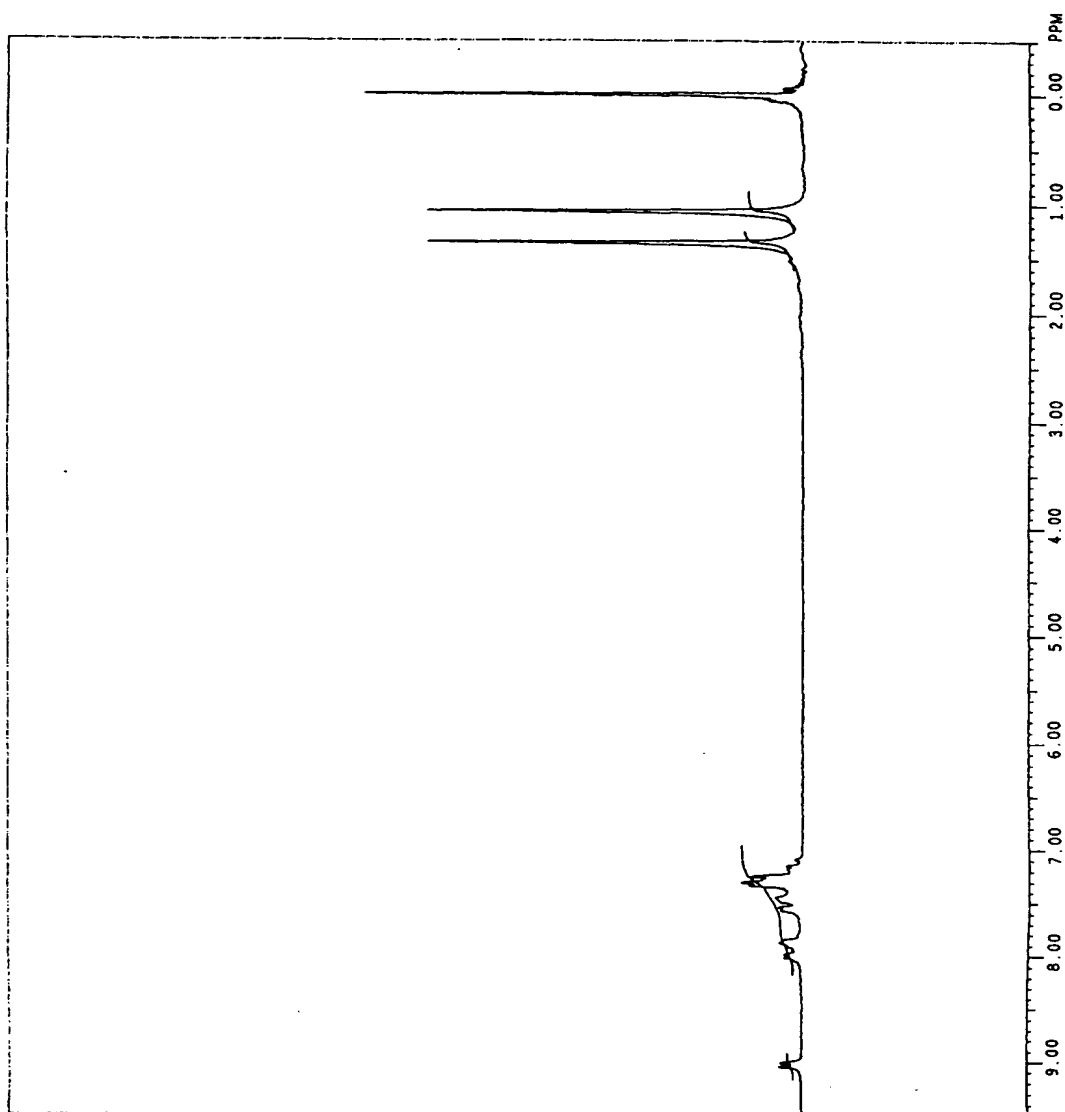
【図 12】



【図 13】

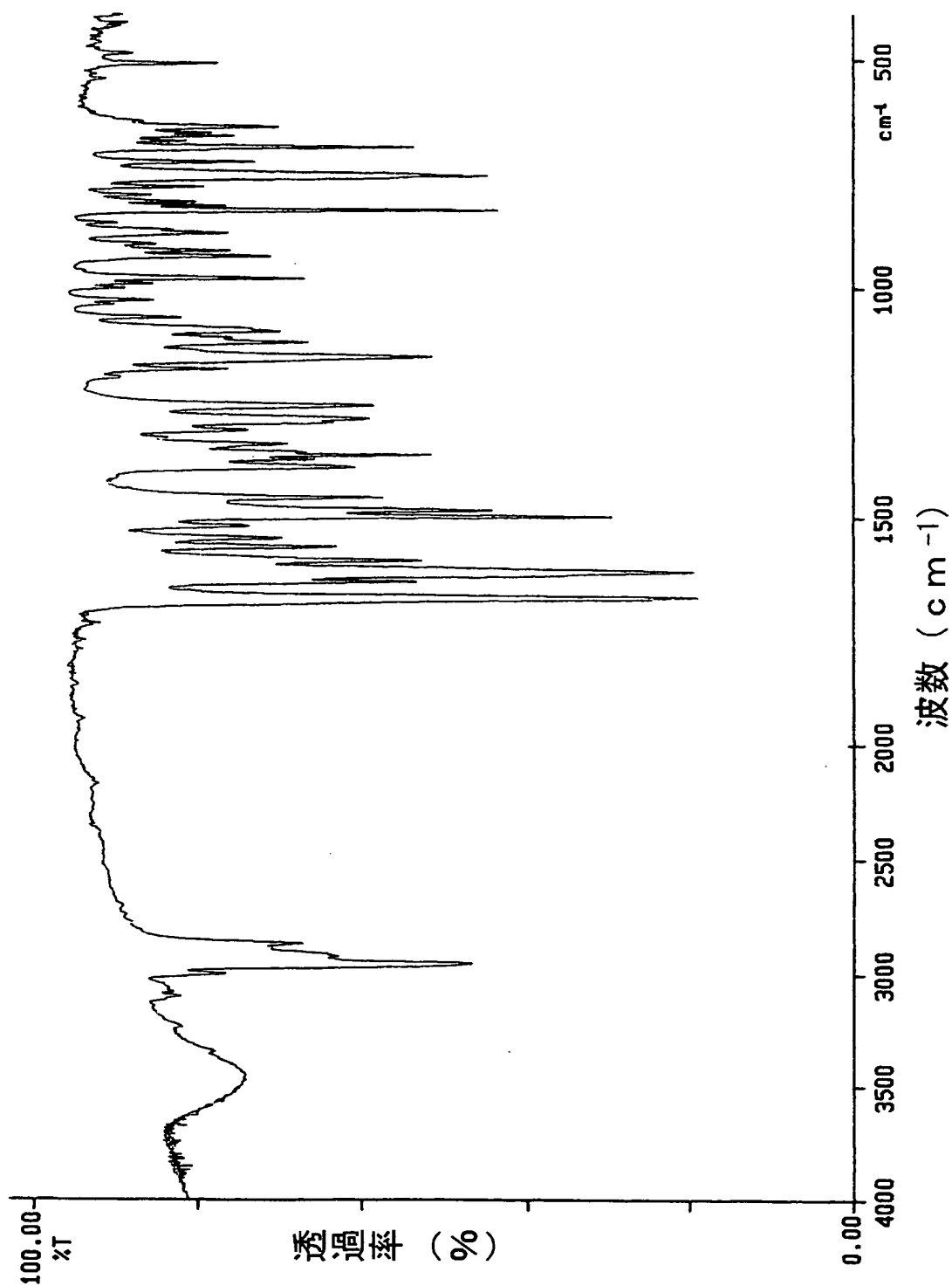


【図 14】

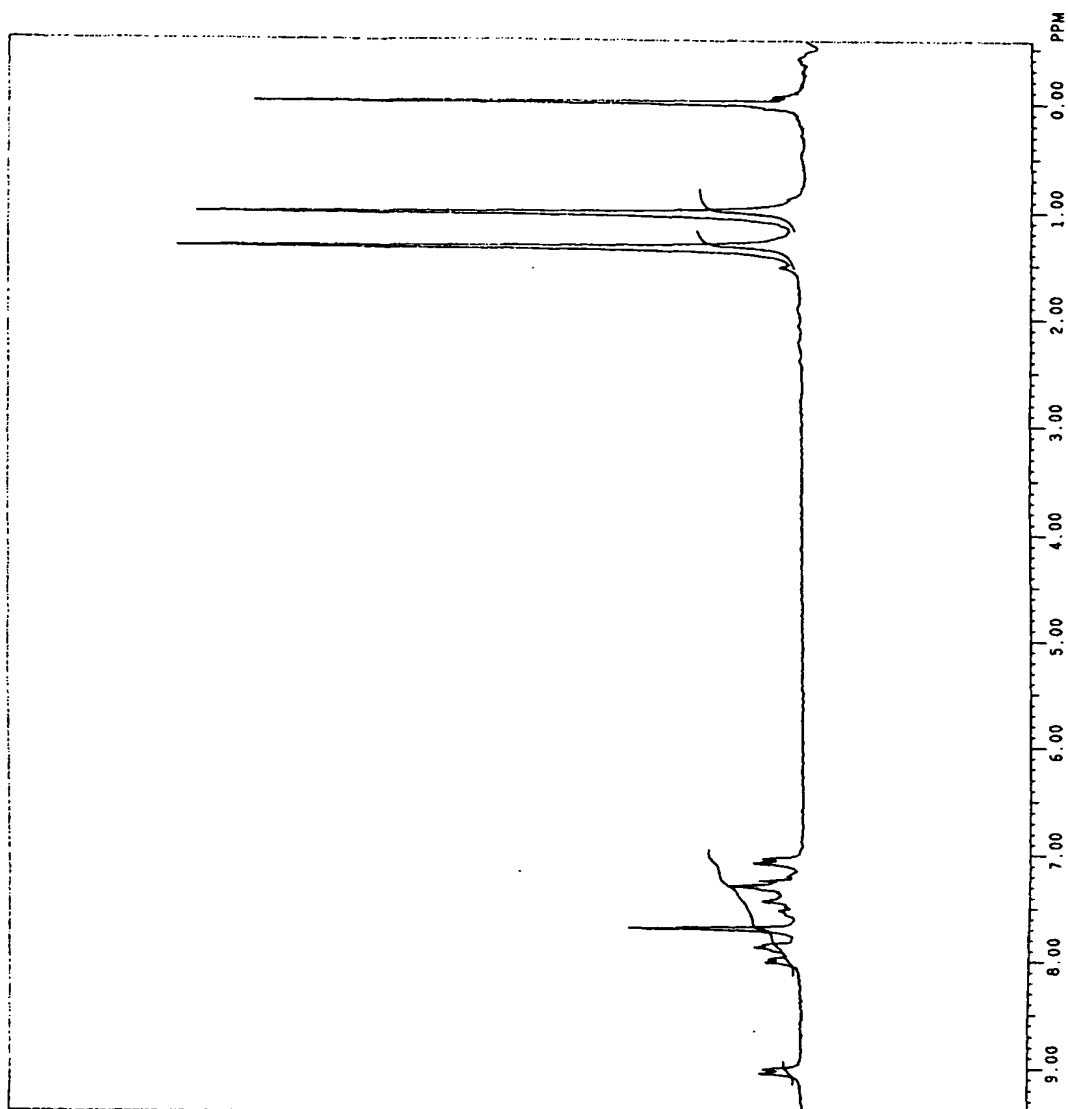




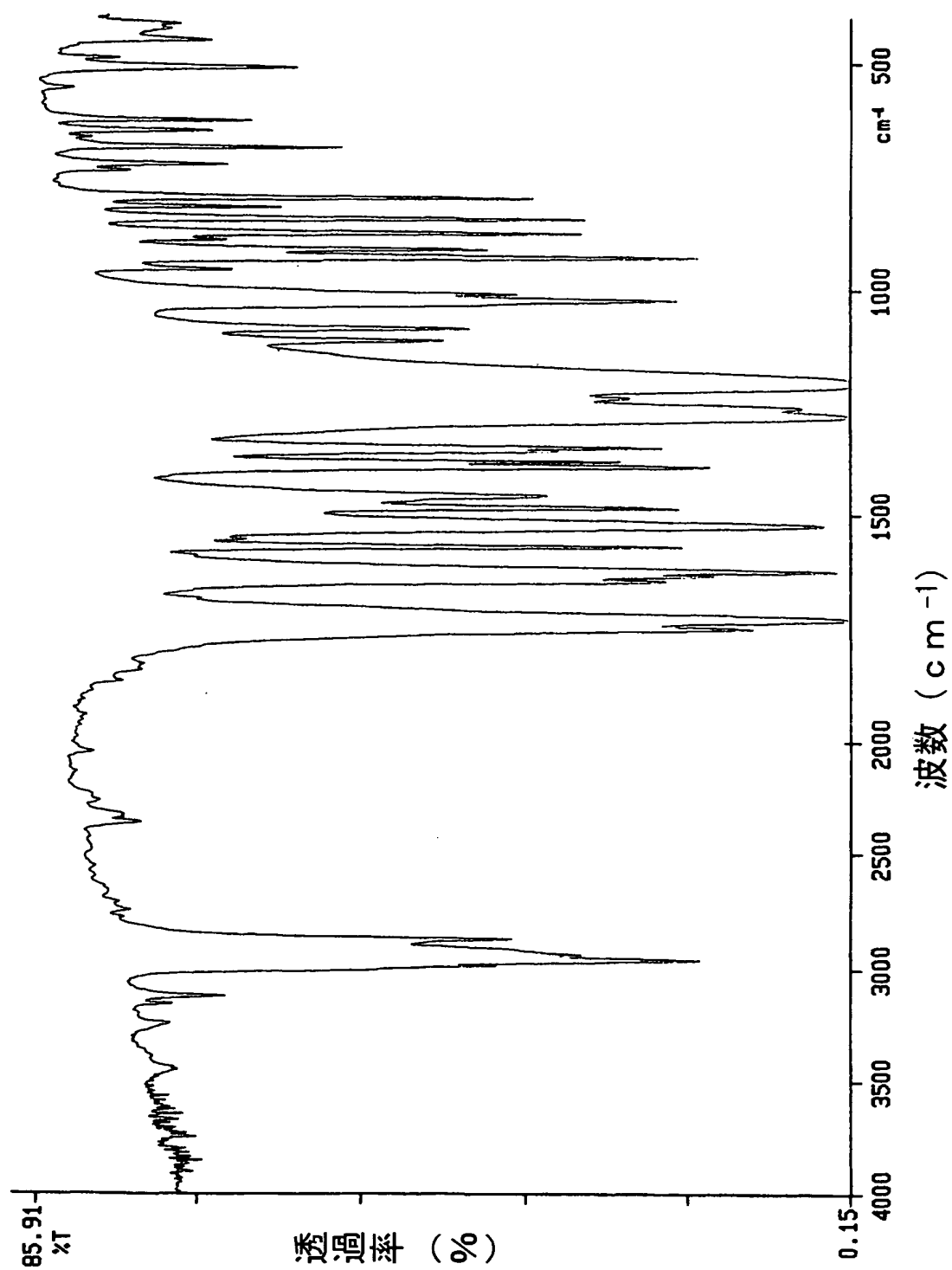
【図 15】



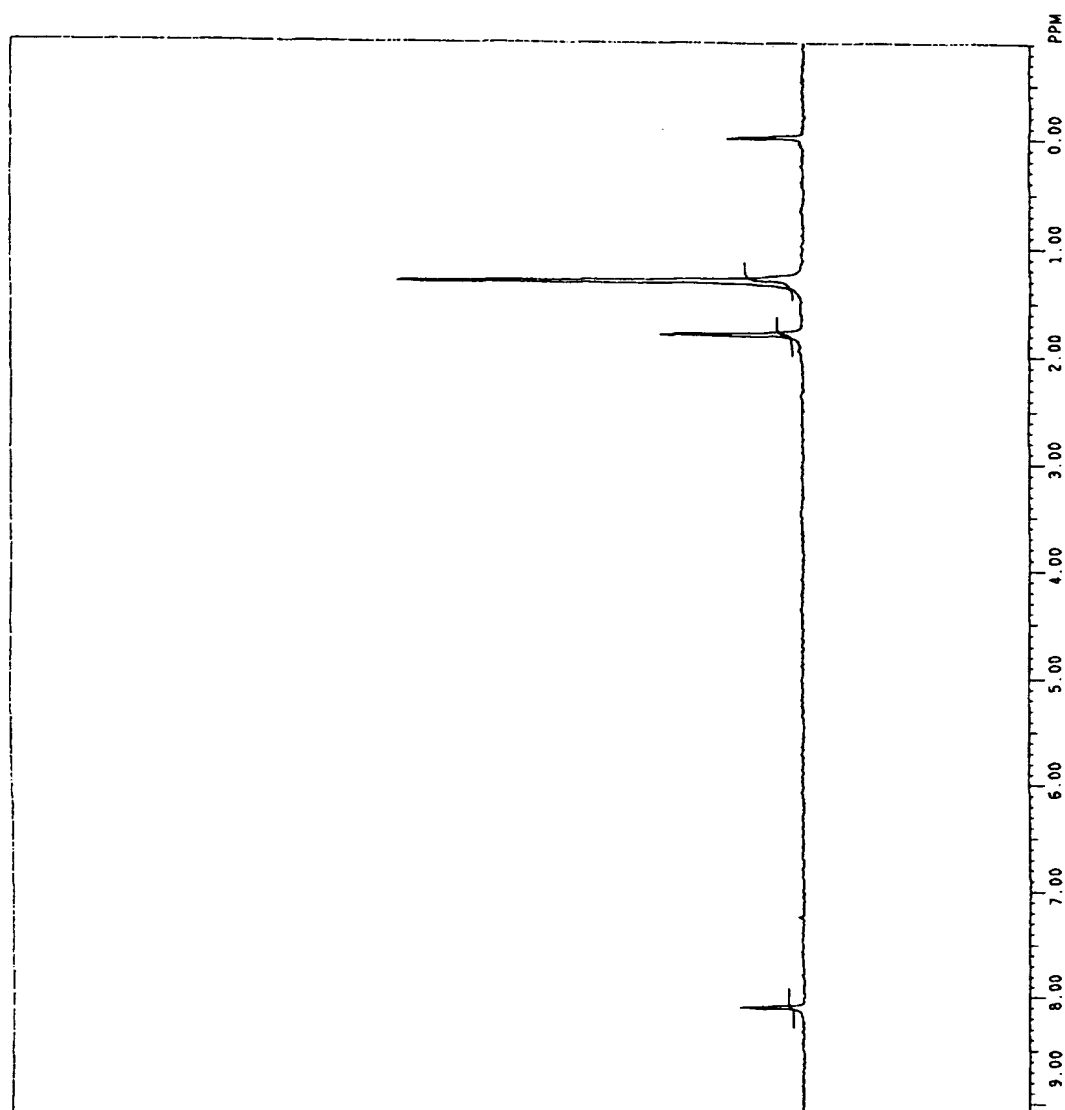
【図 16】



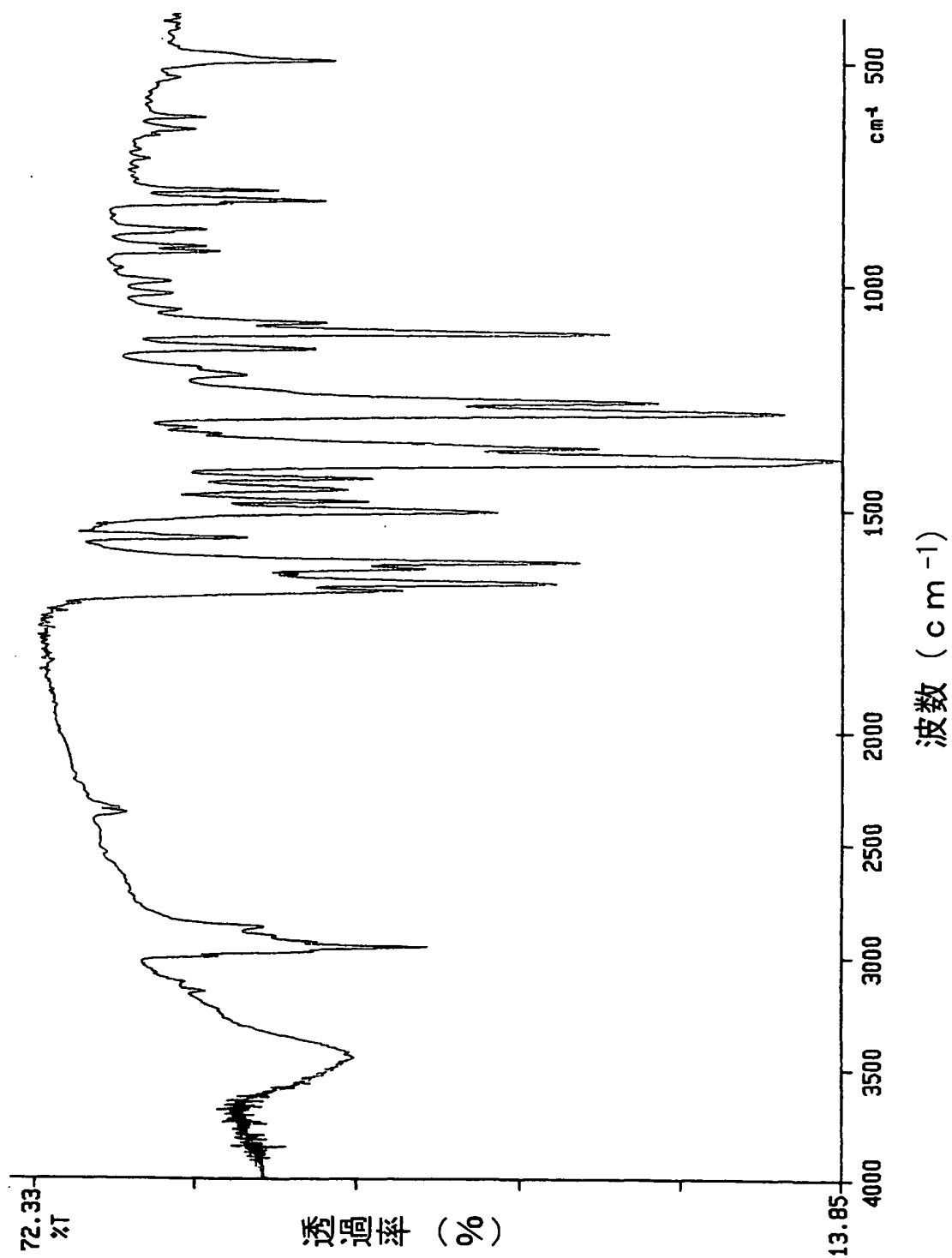
【図 17】



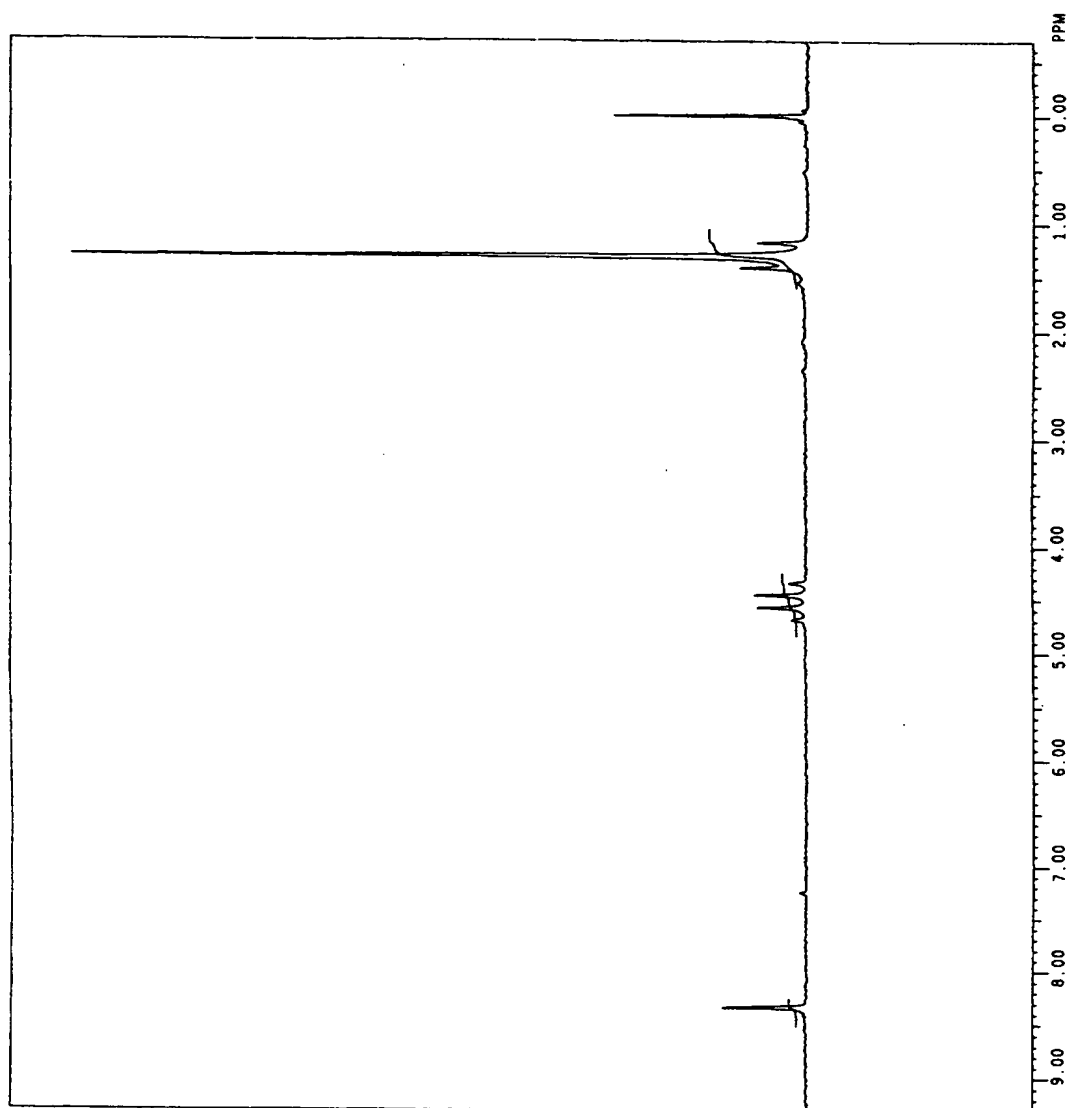
【図 18】



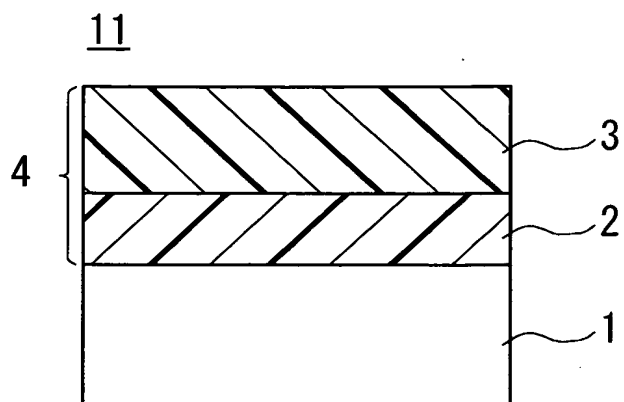
【図 19】



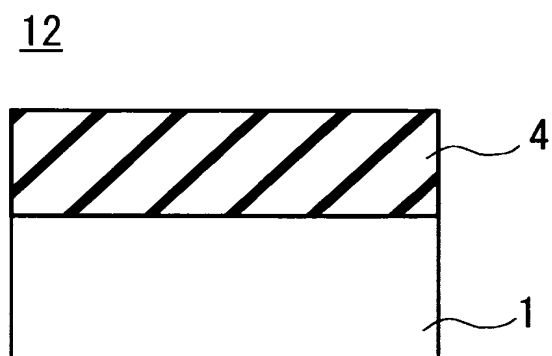
【図 20】



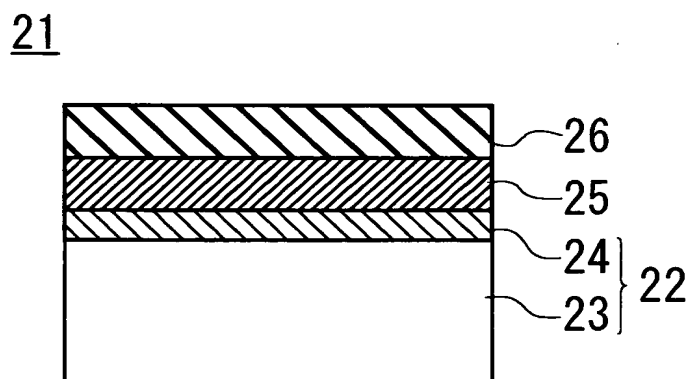
【図 2 1】



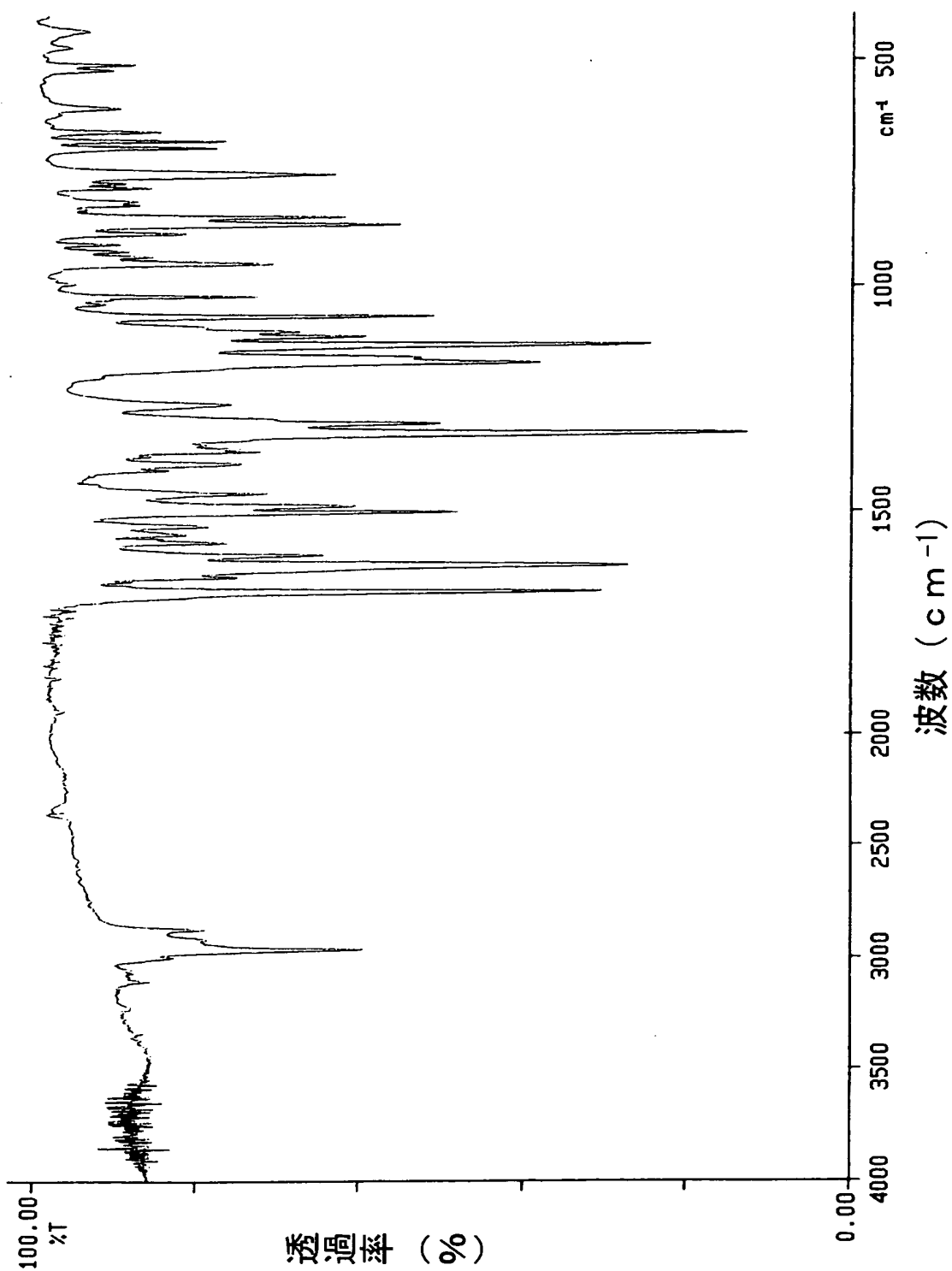
【図 2 2】



【図 2 3】

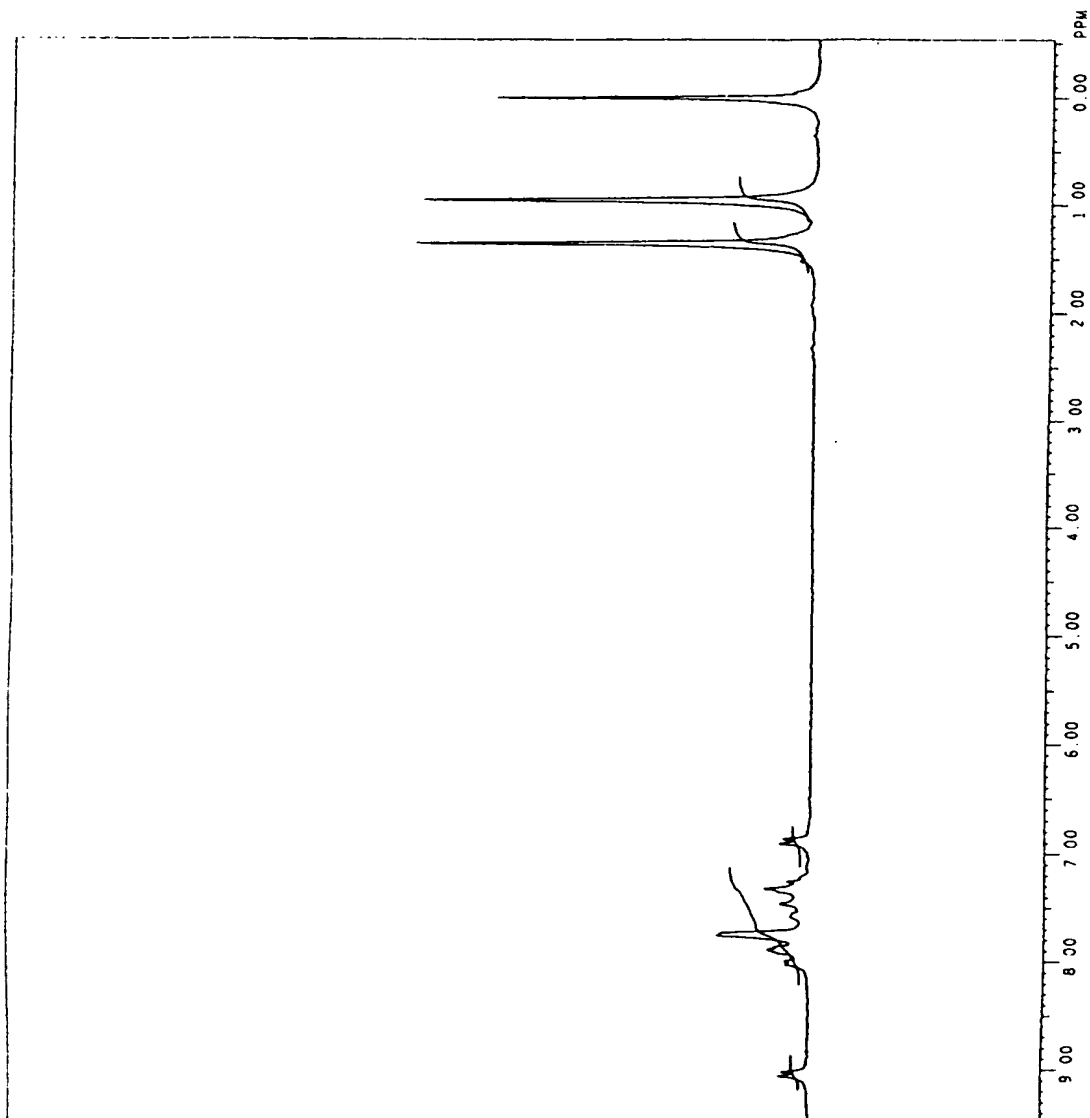


【図 24】

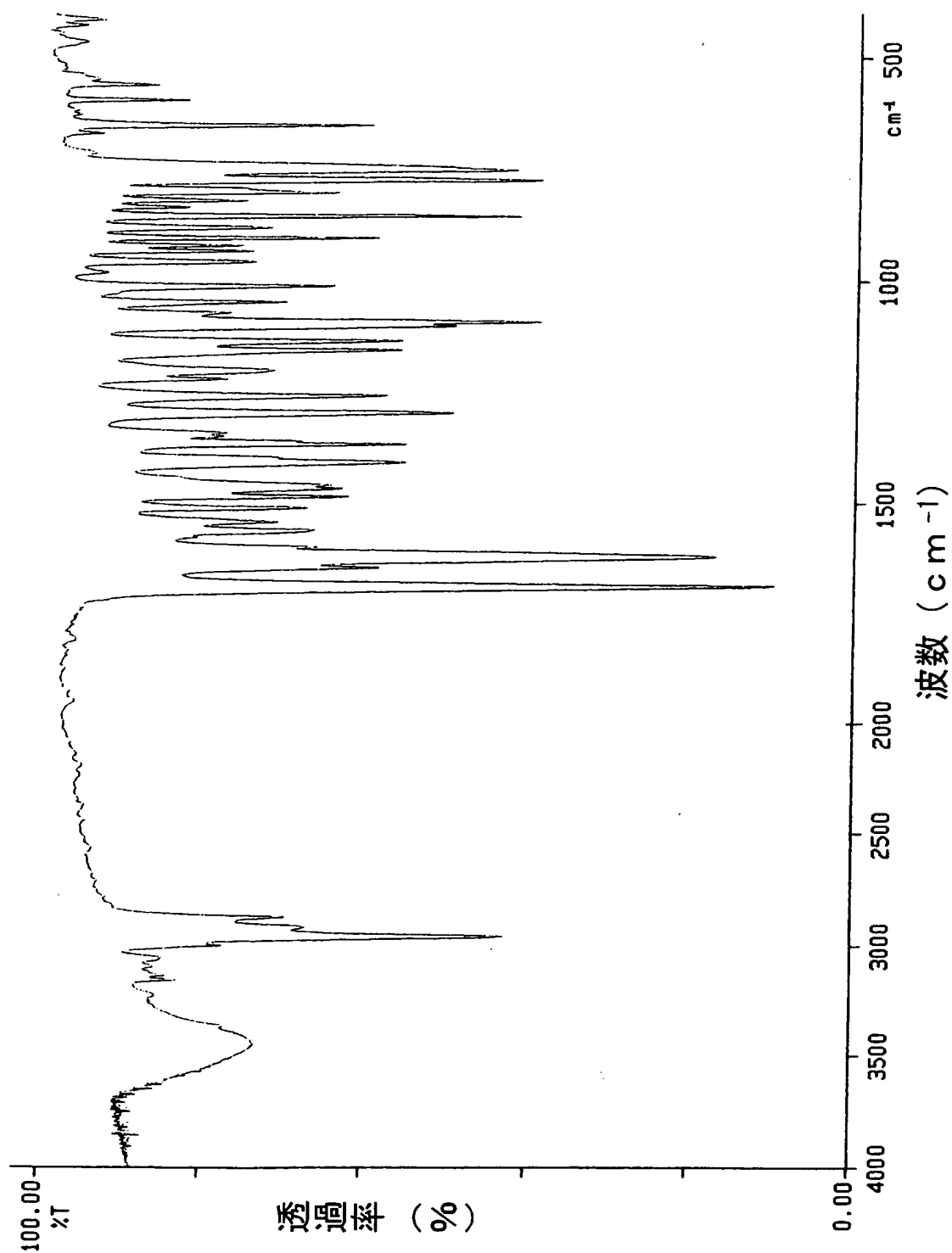




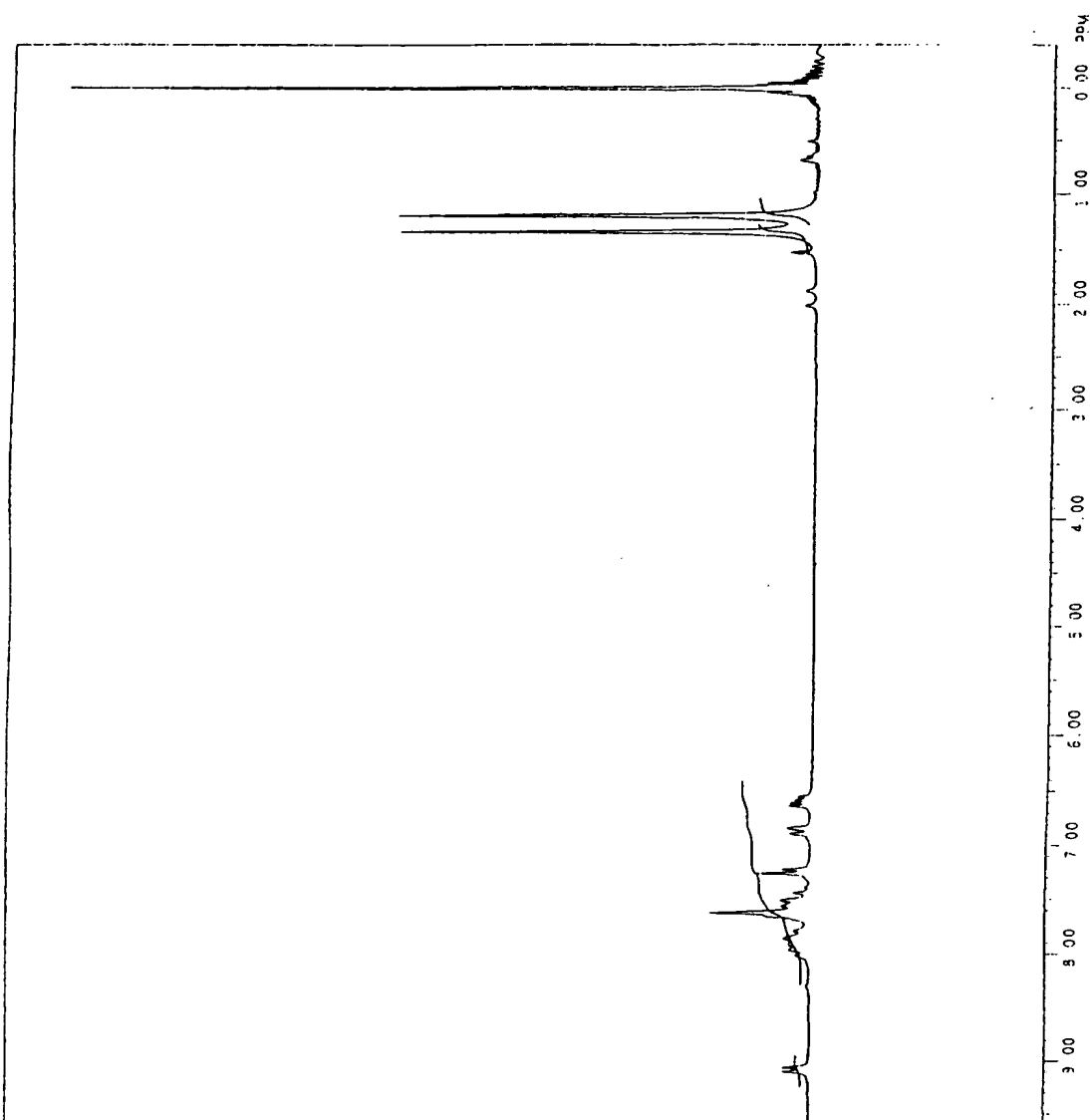
【図 25】



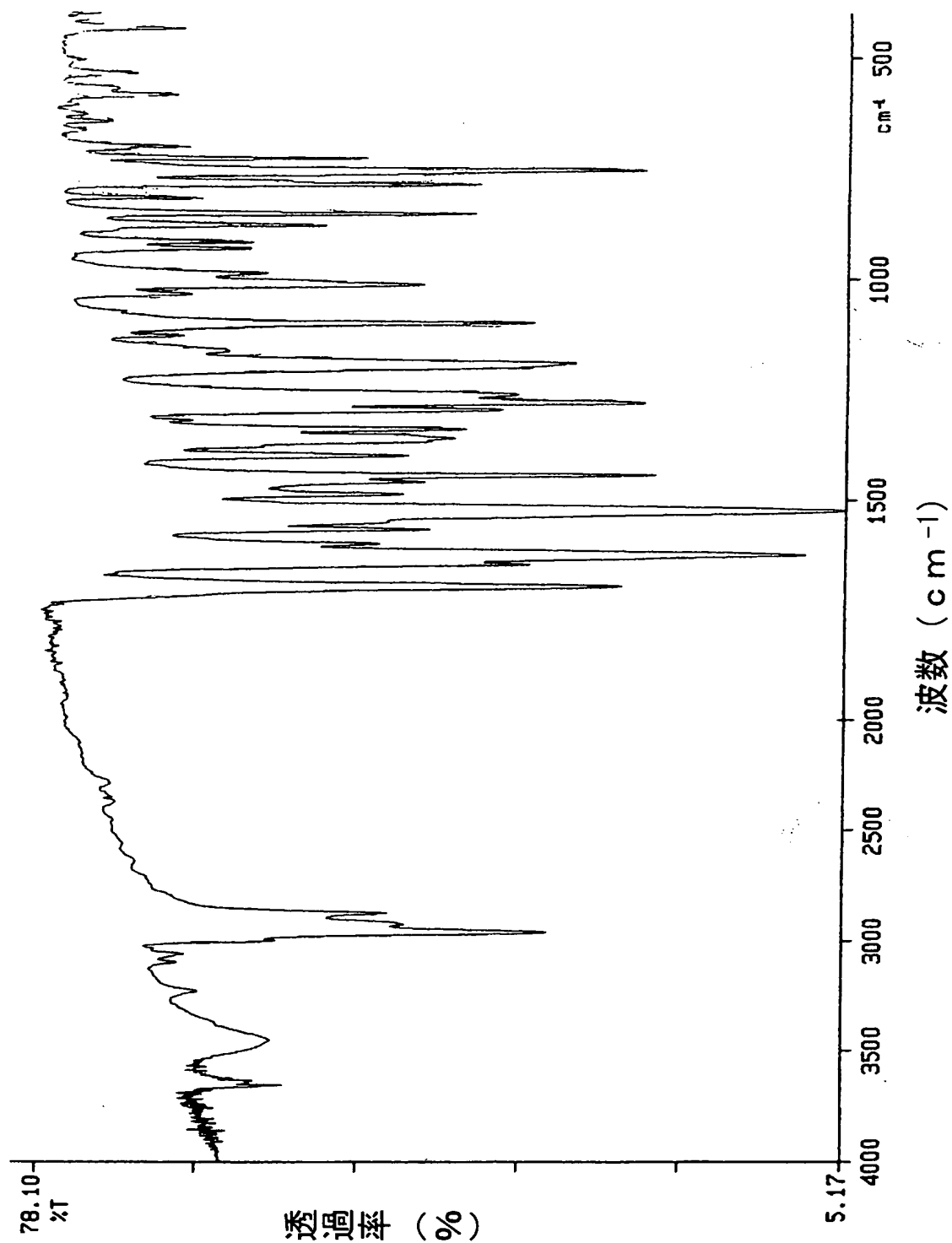
【図 26】



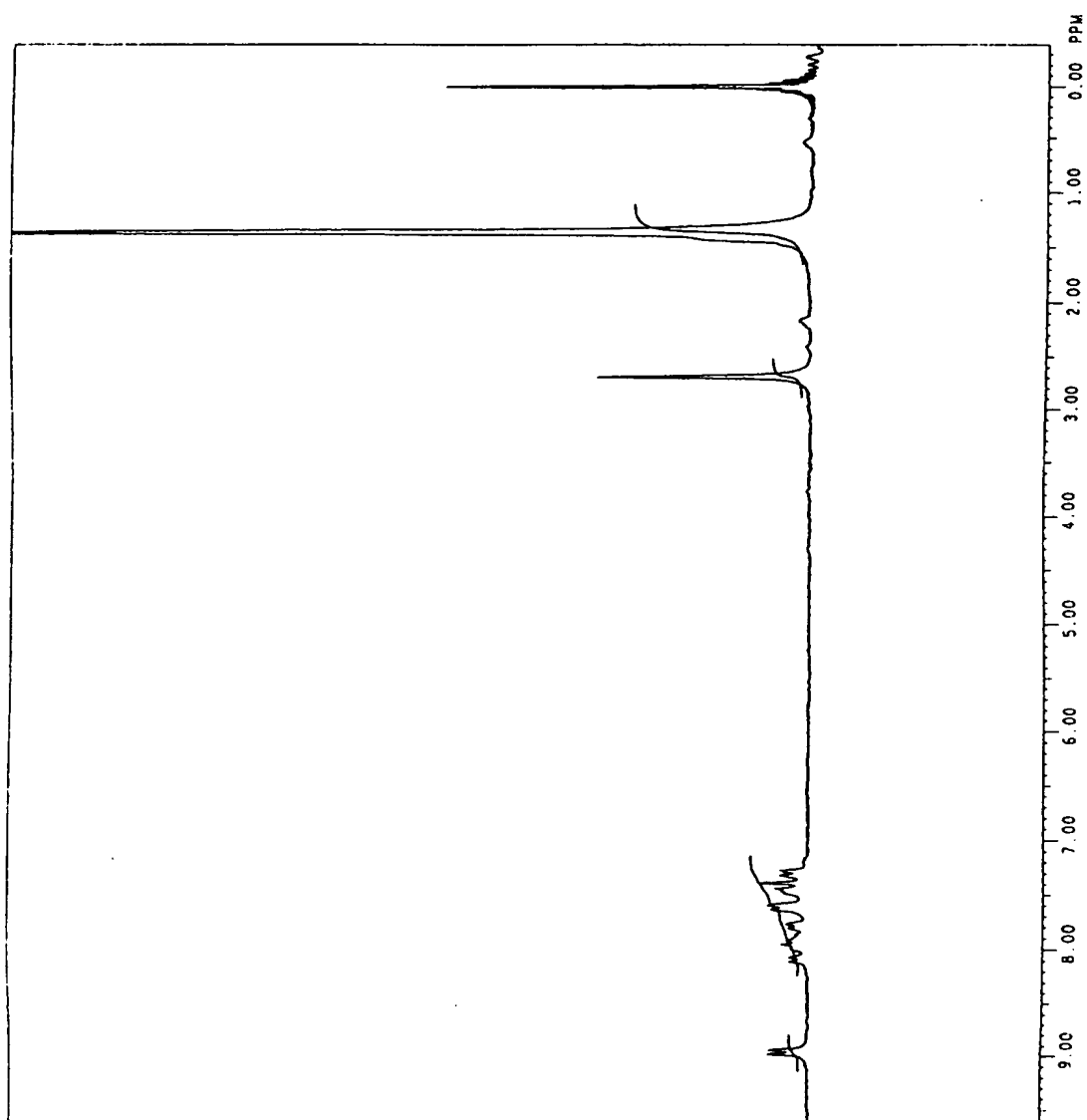
【図 27】



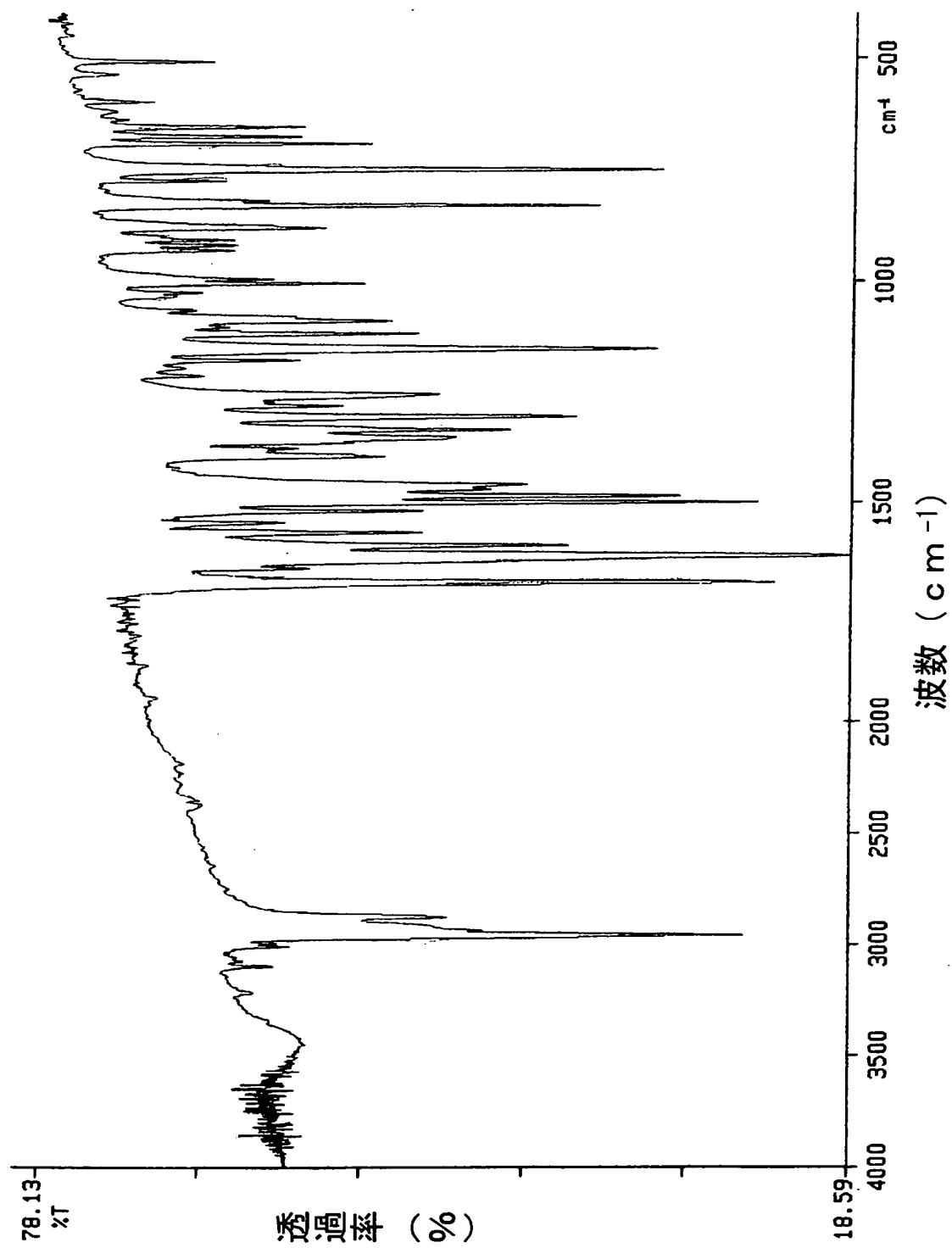
【図 28】



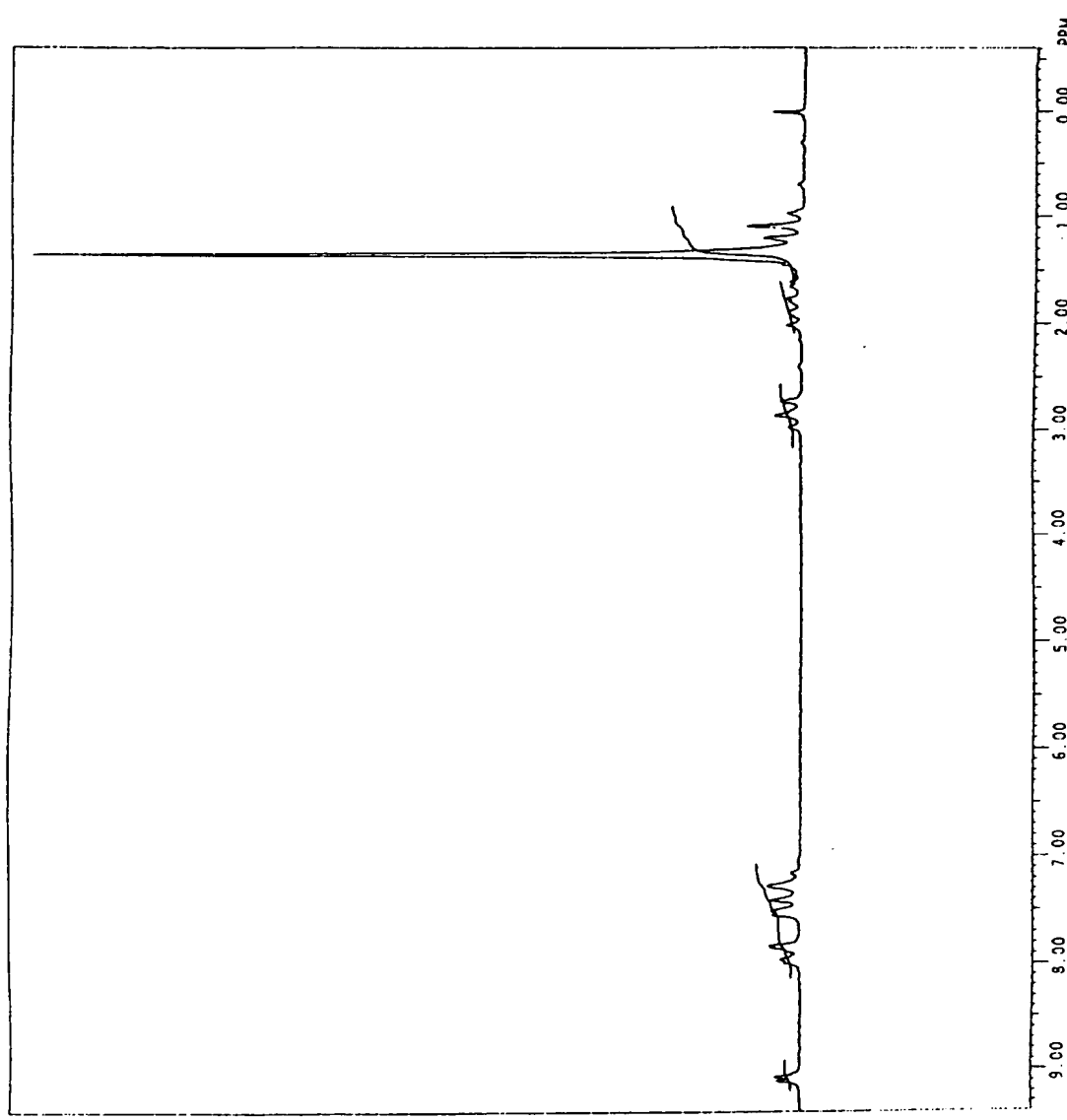
【図 29】



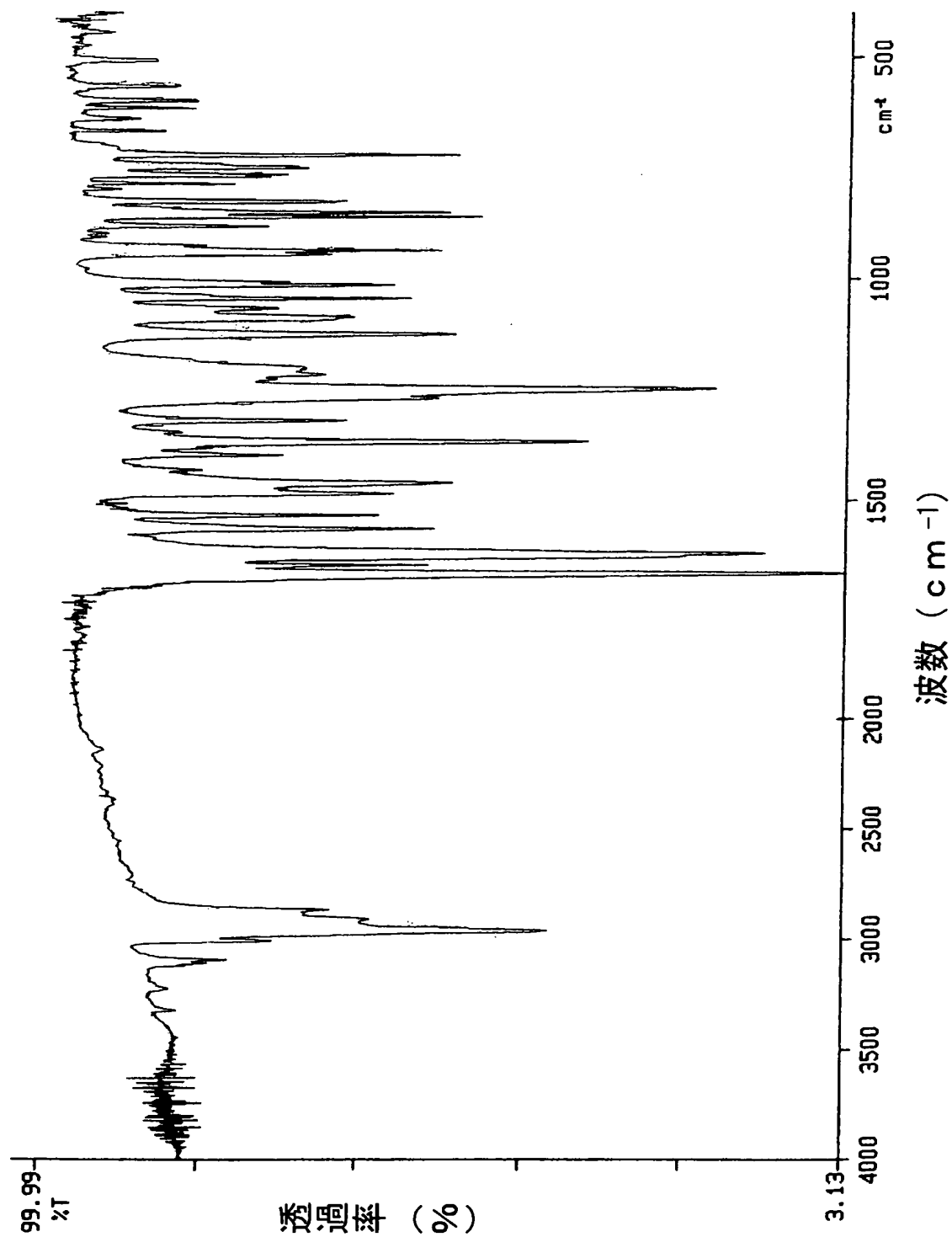
【図 30】



【図 31】

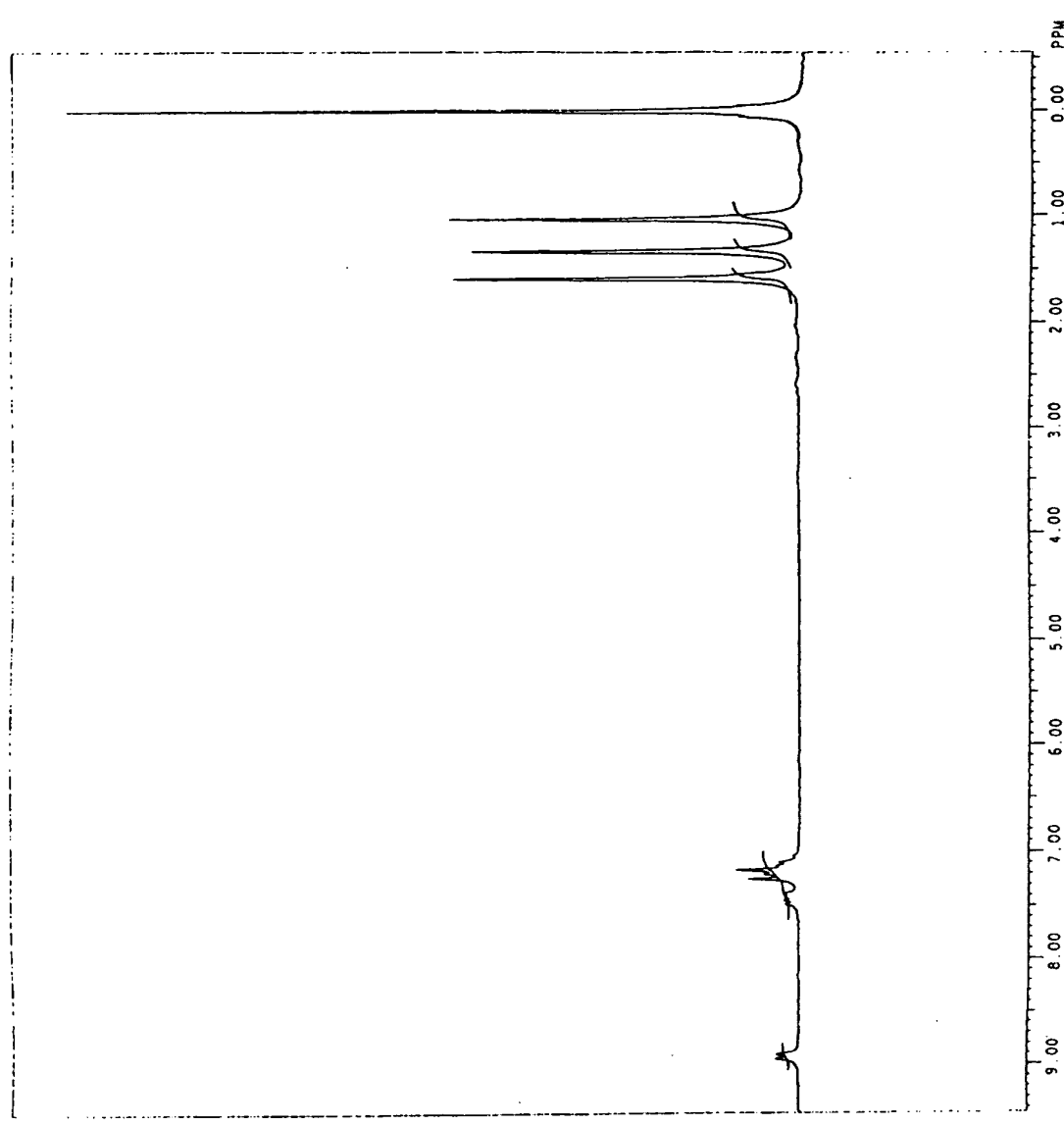


【図 32】

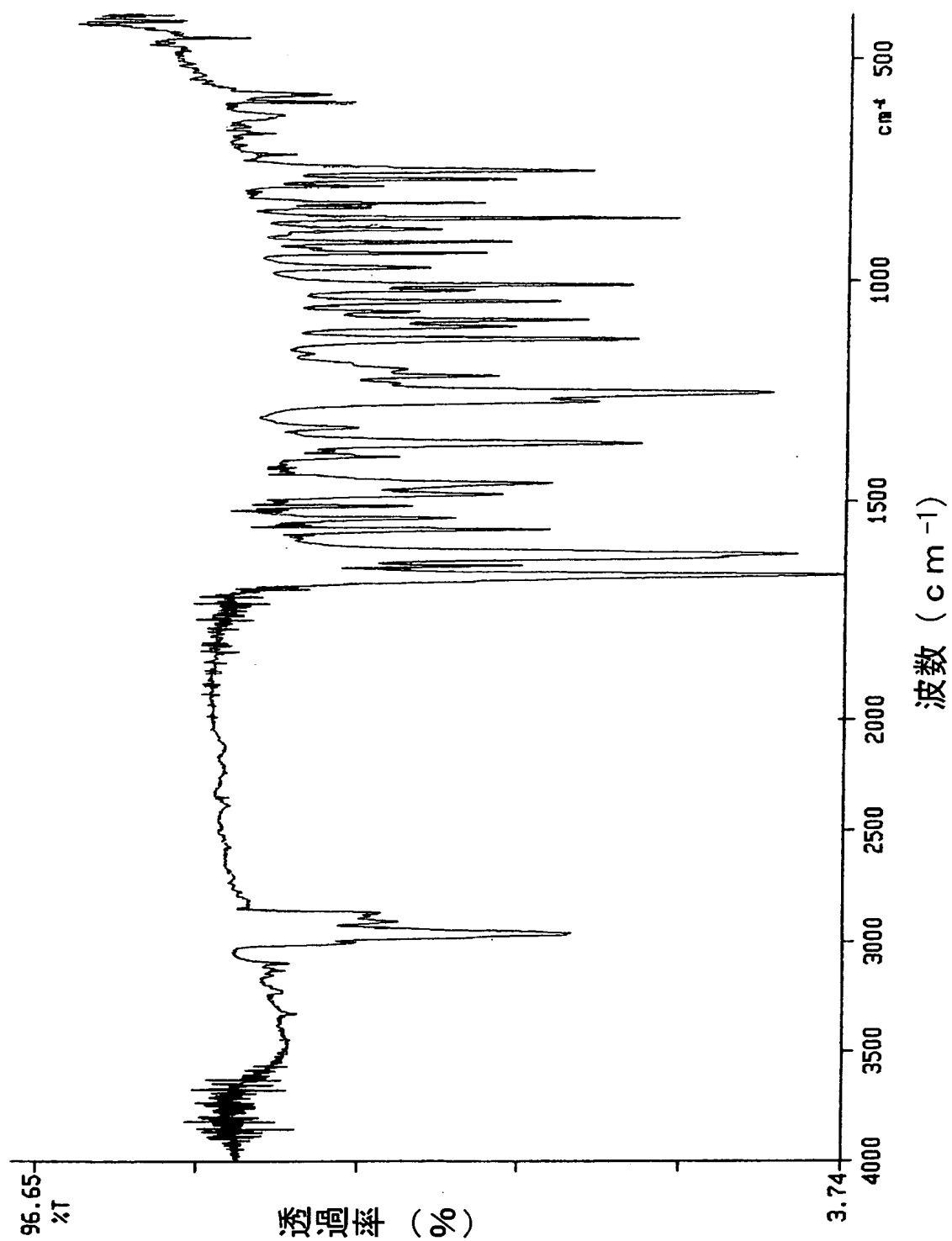




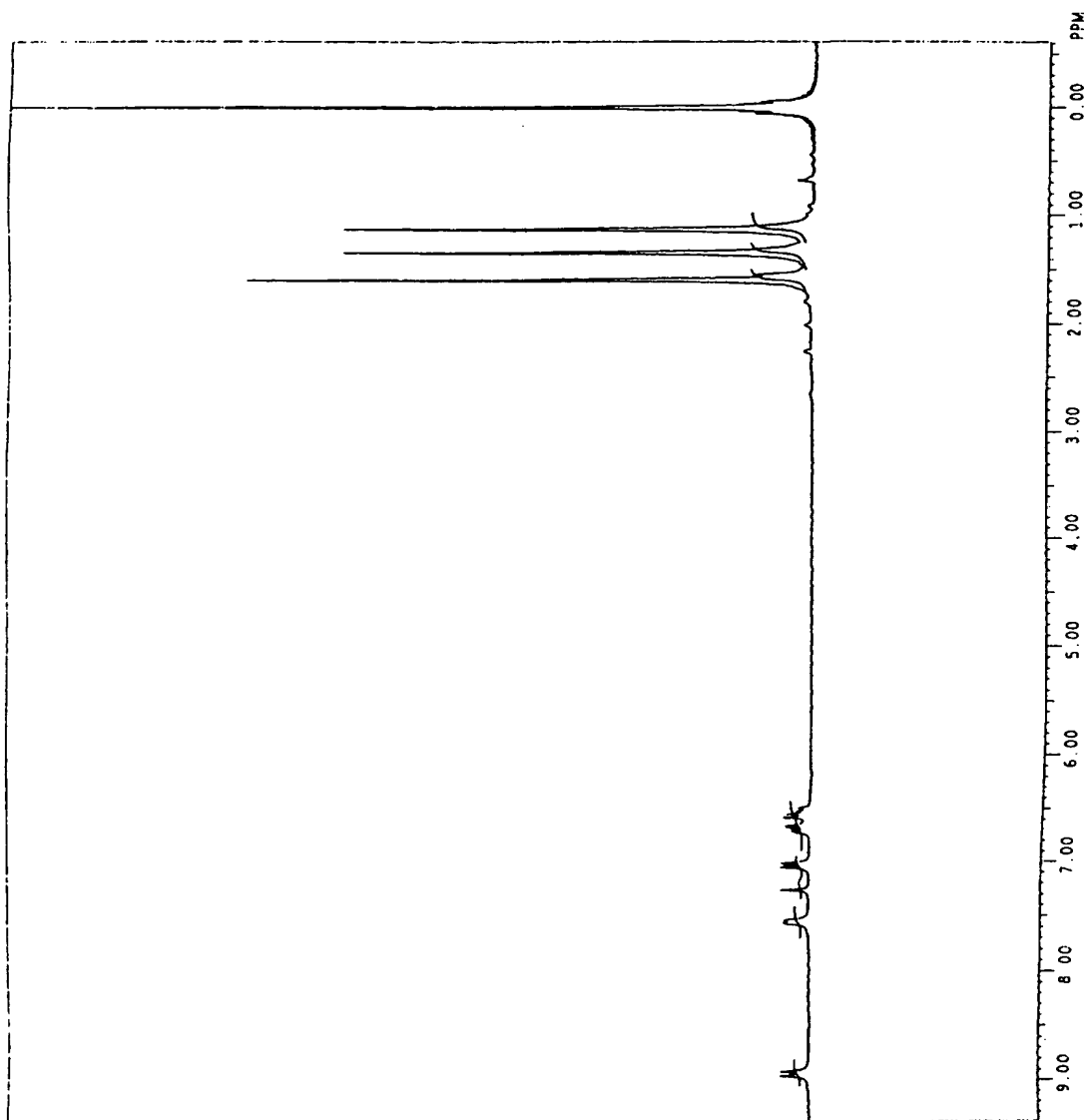
【図 33】



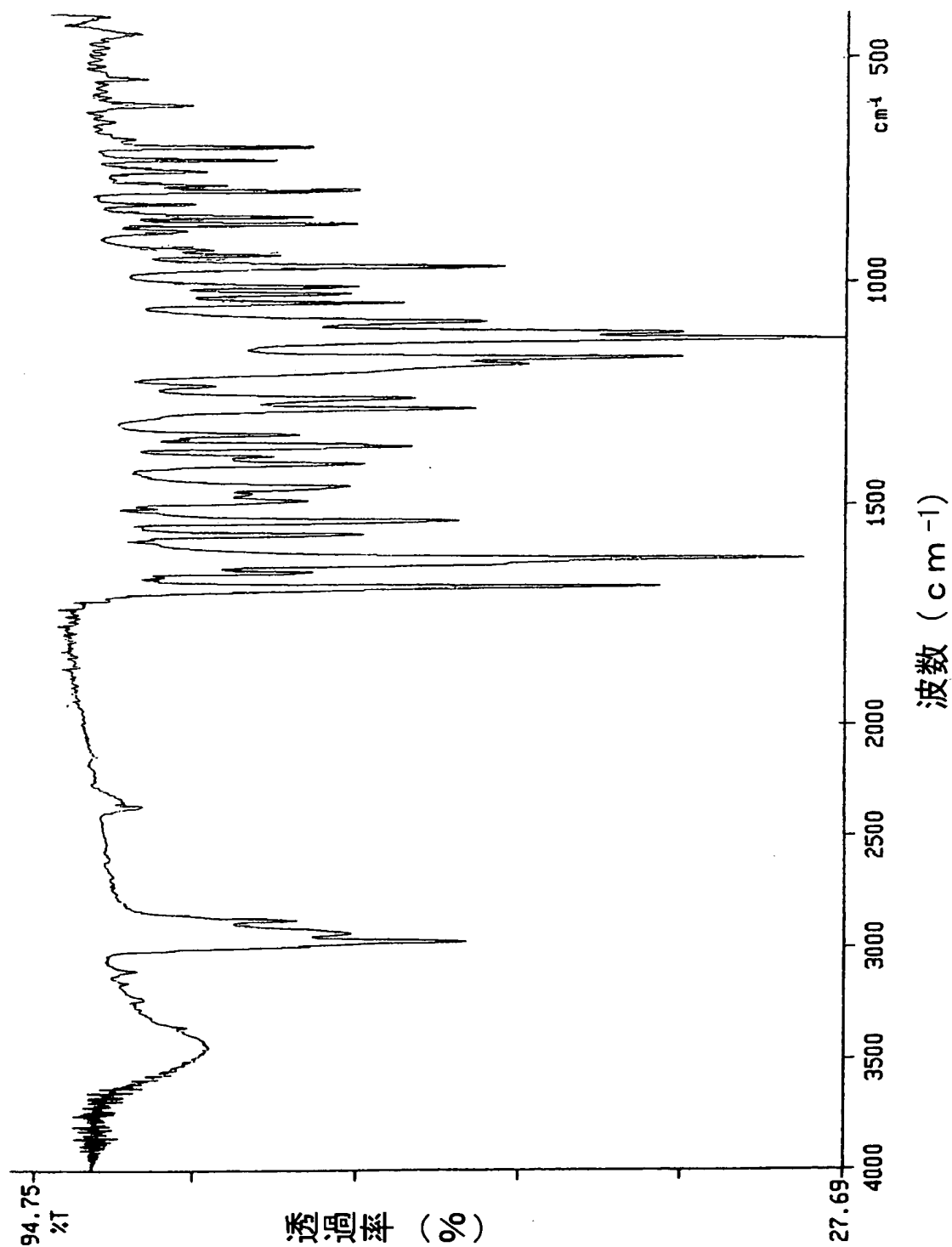
【図 34】



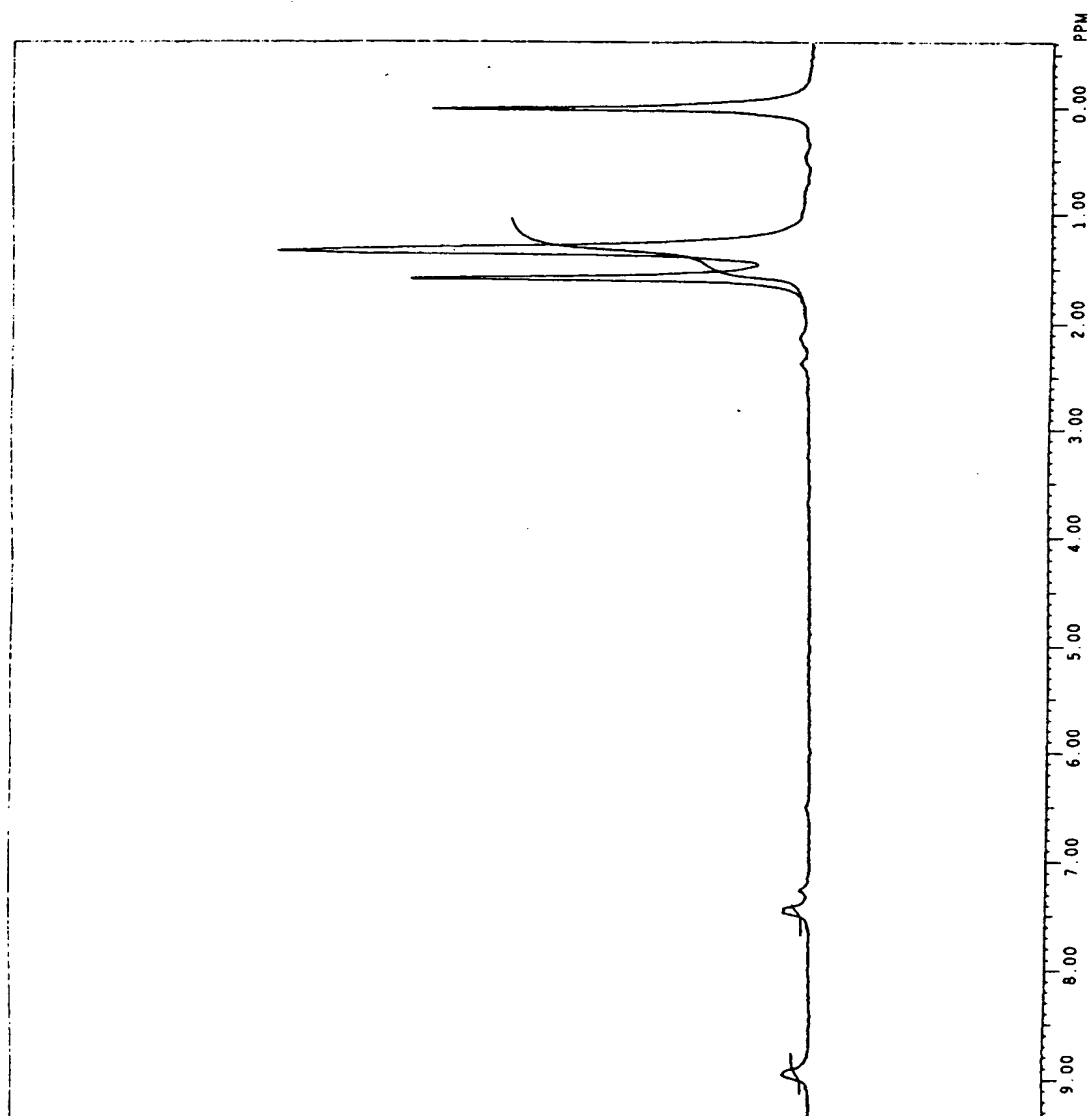
【図 35】



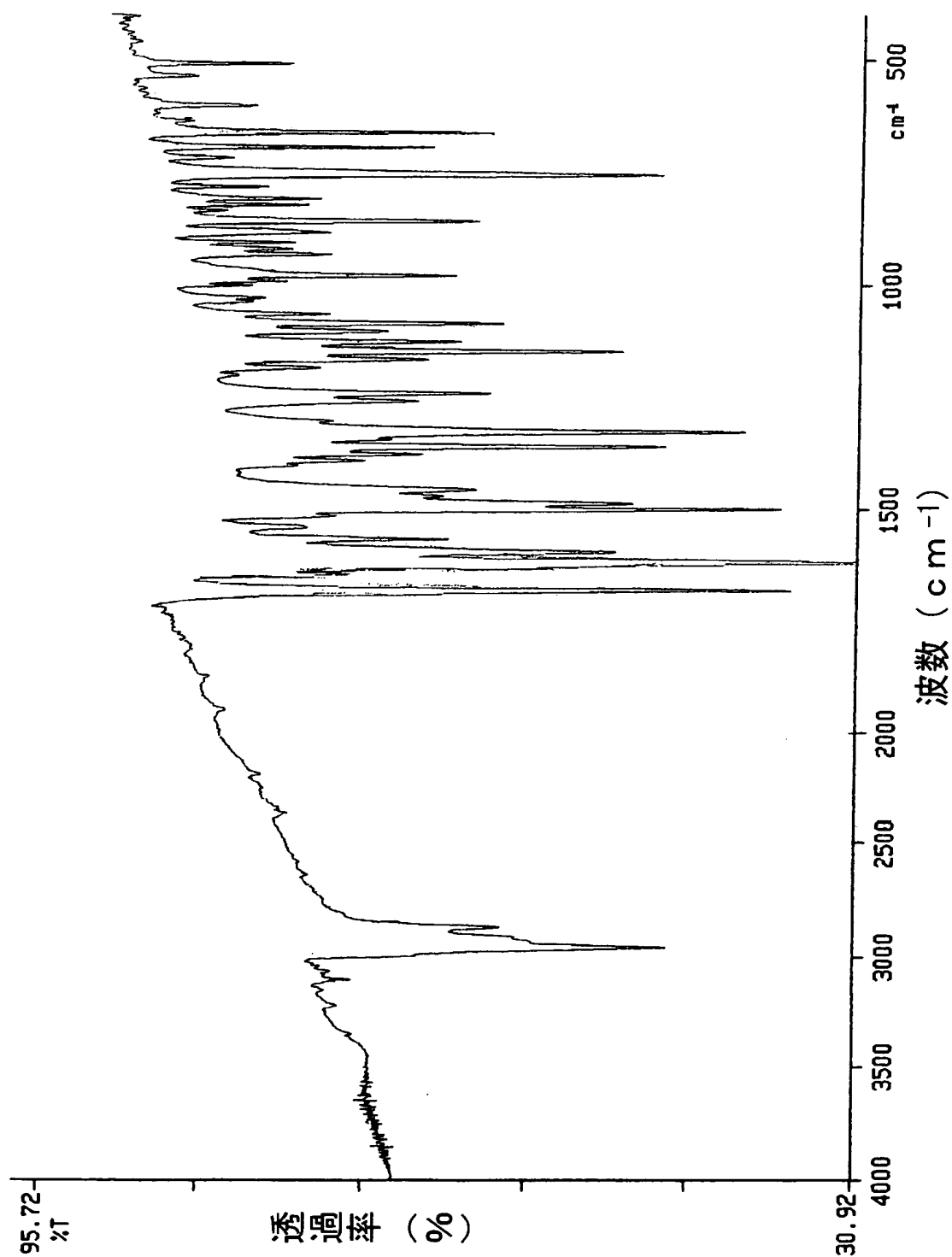
【図 36】



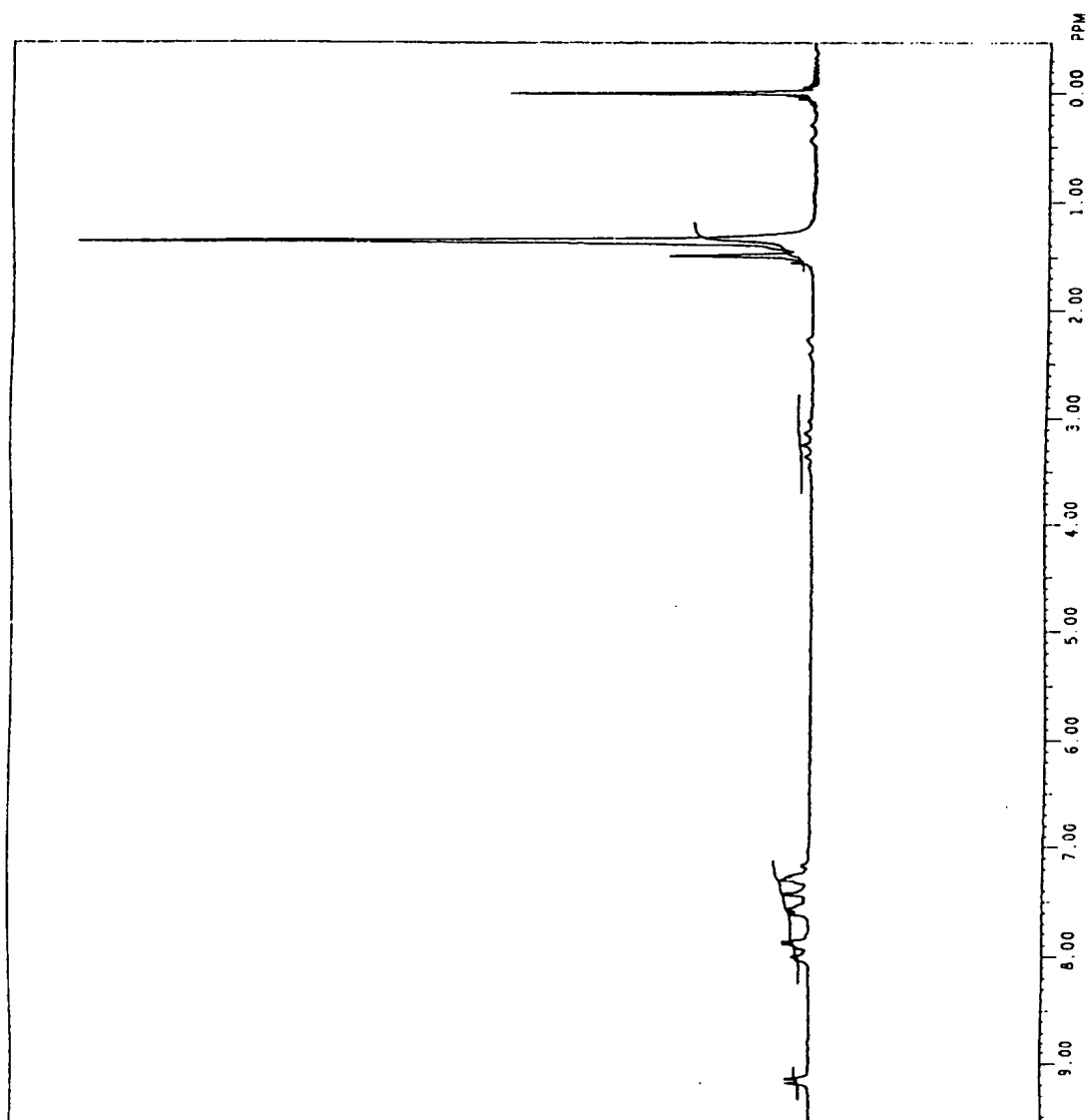
【図 37】



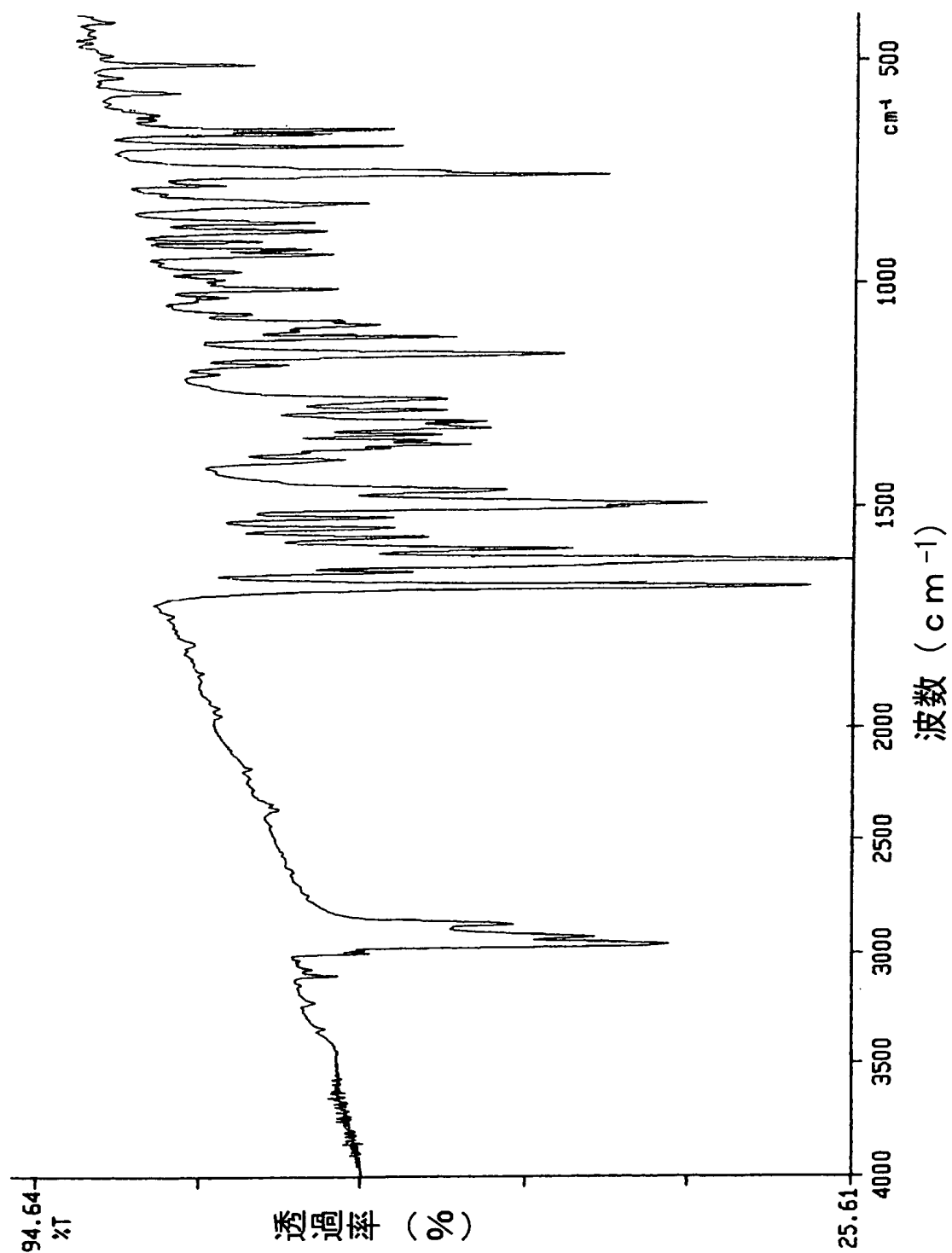
【図 38】



【図 39】

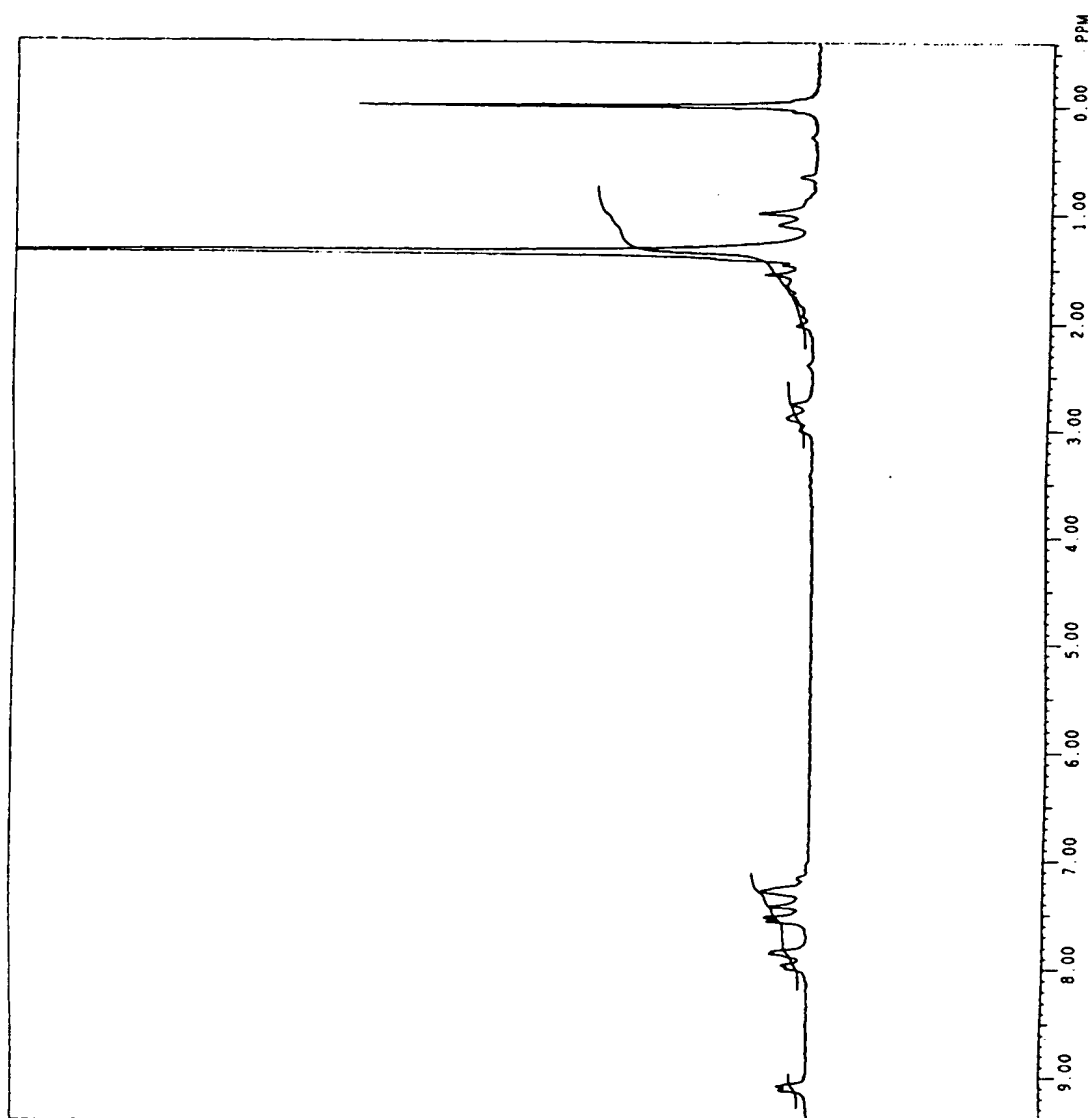


【図 40】

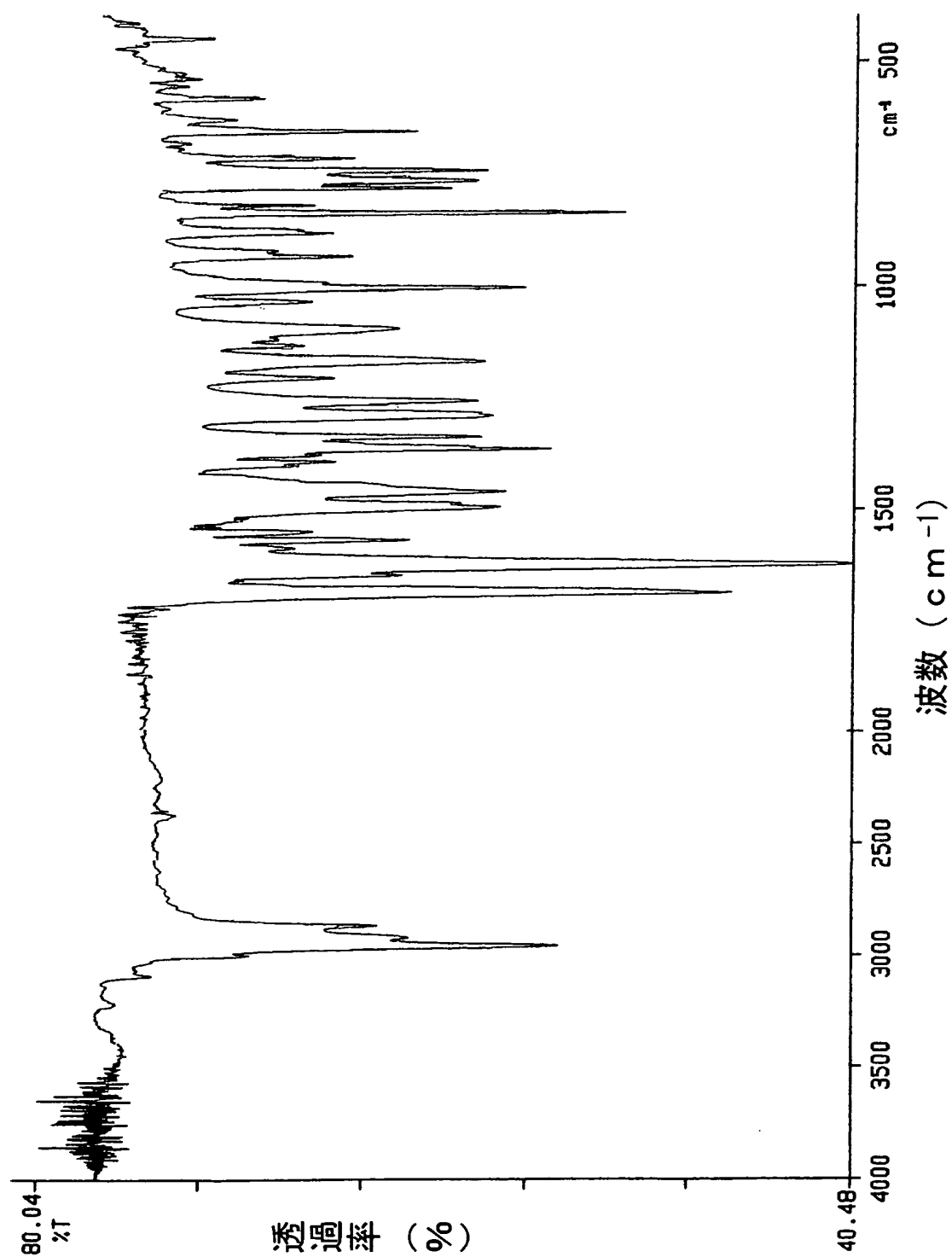




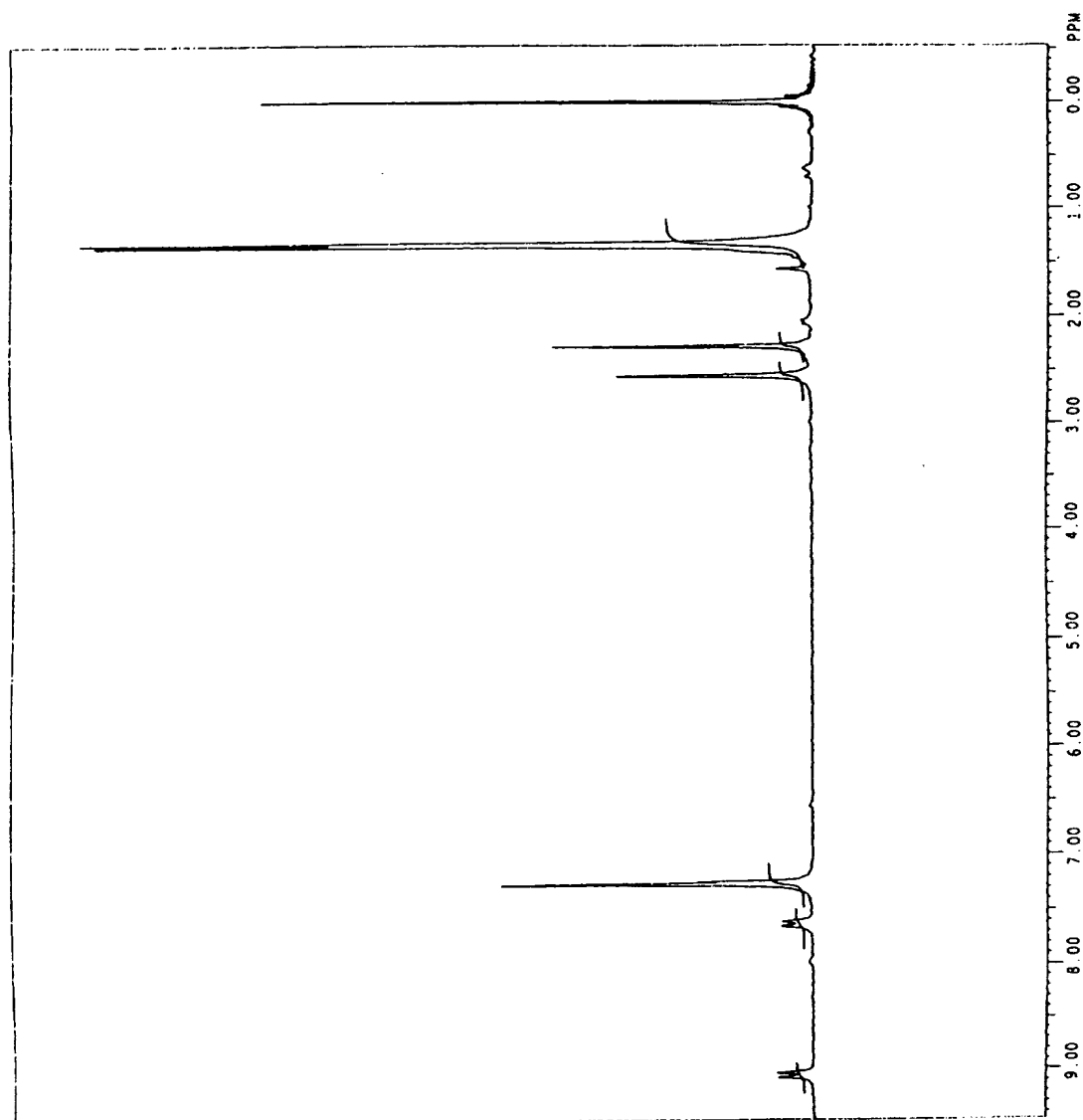
【図 41】



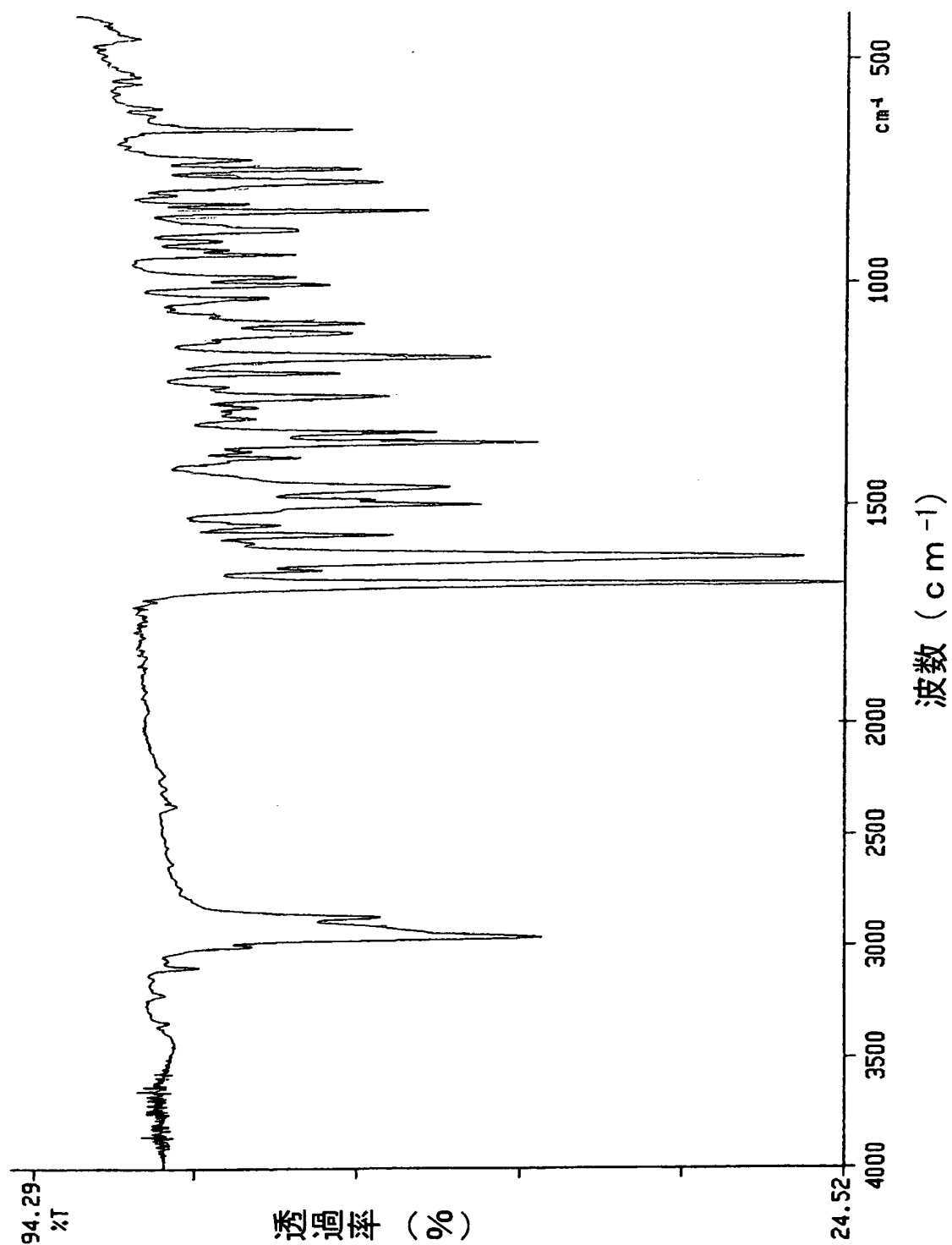
【図 4 2】



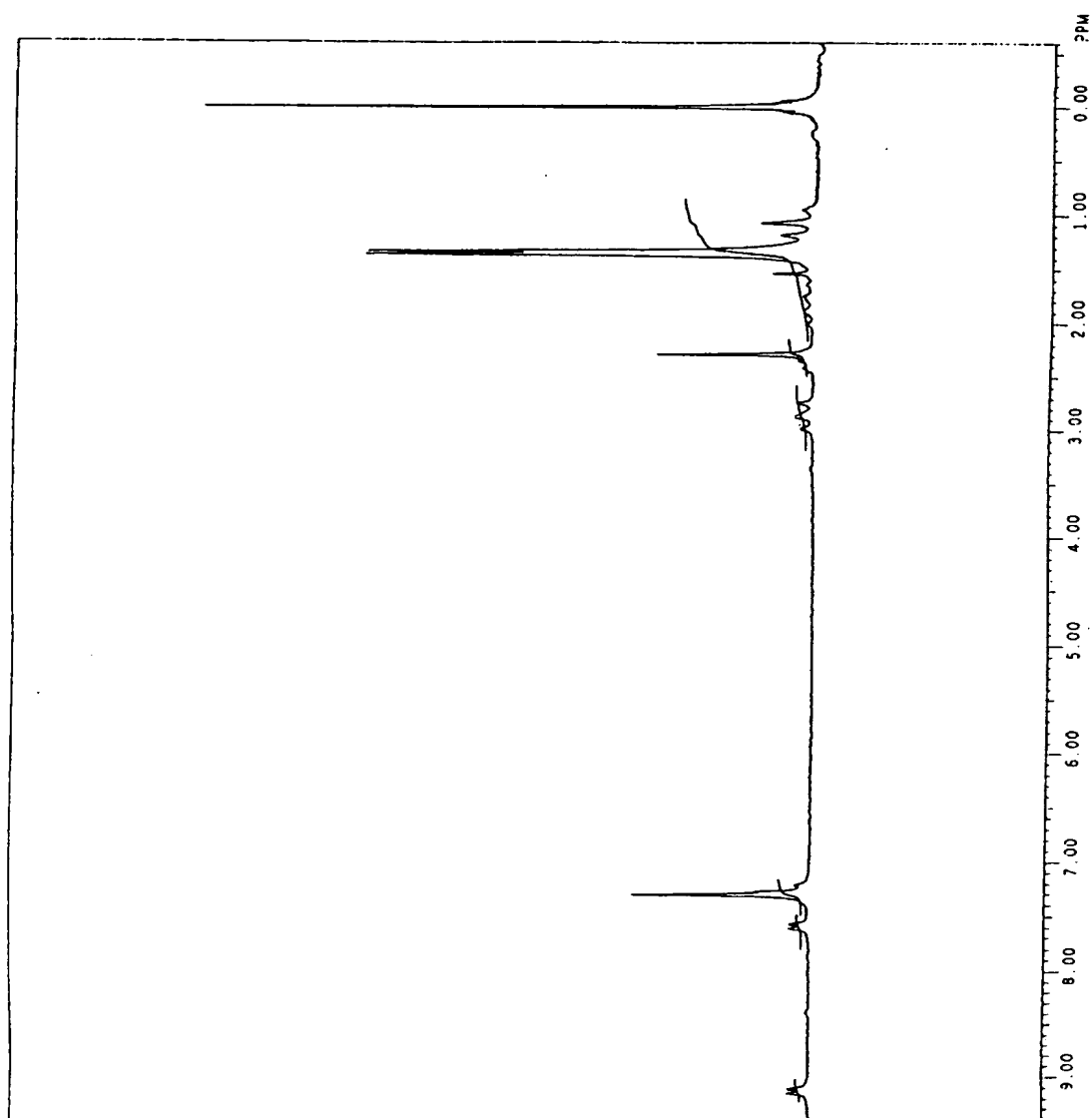
【図 43】



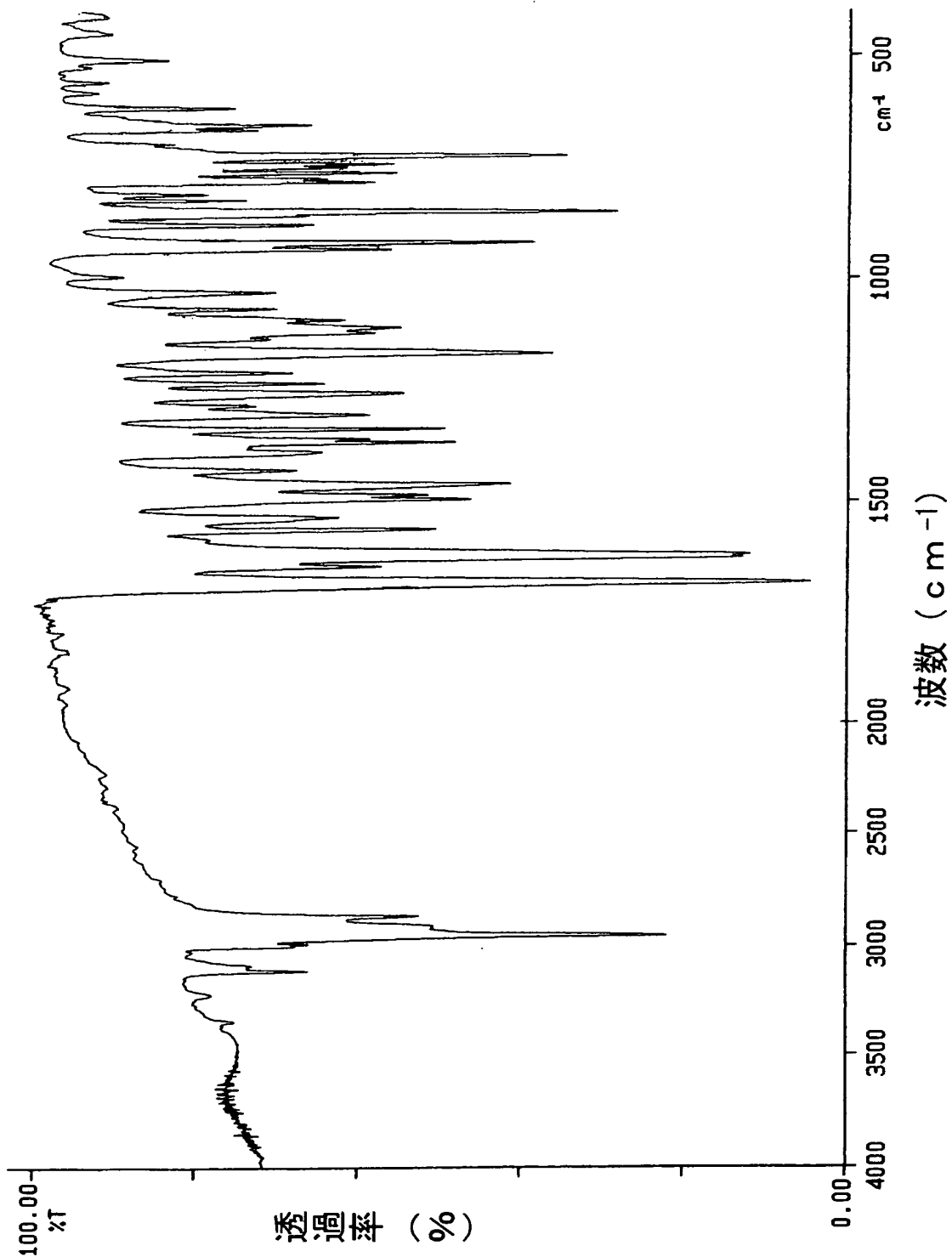
【図 4 4】



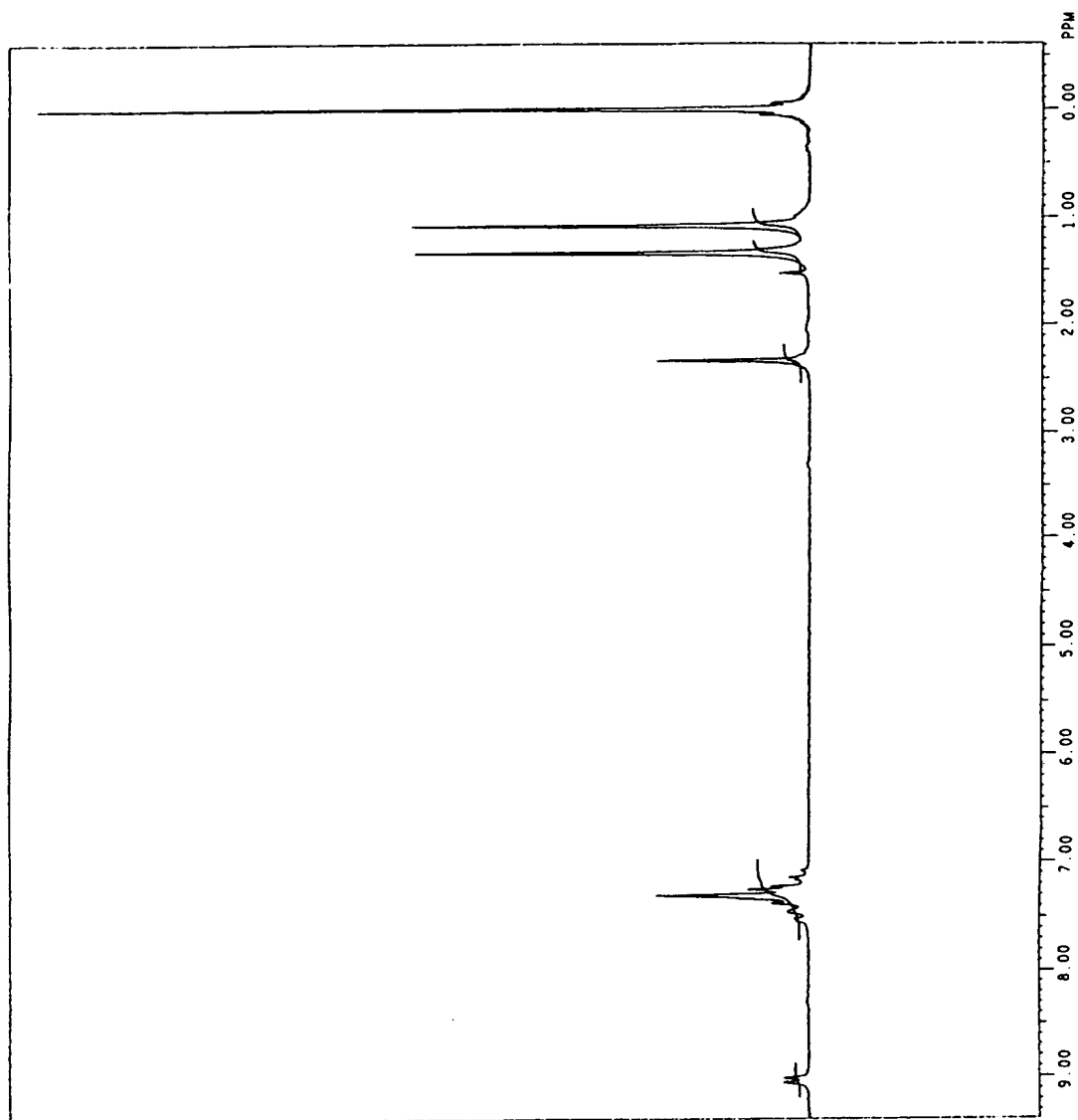
【図 45】



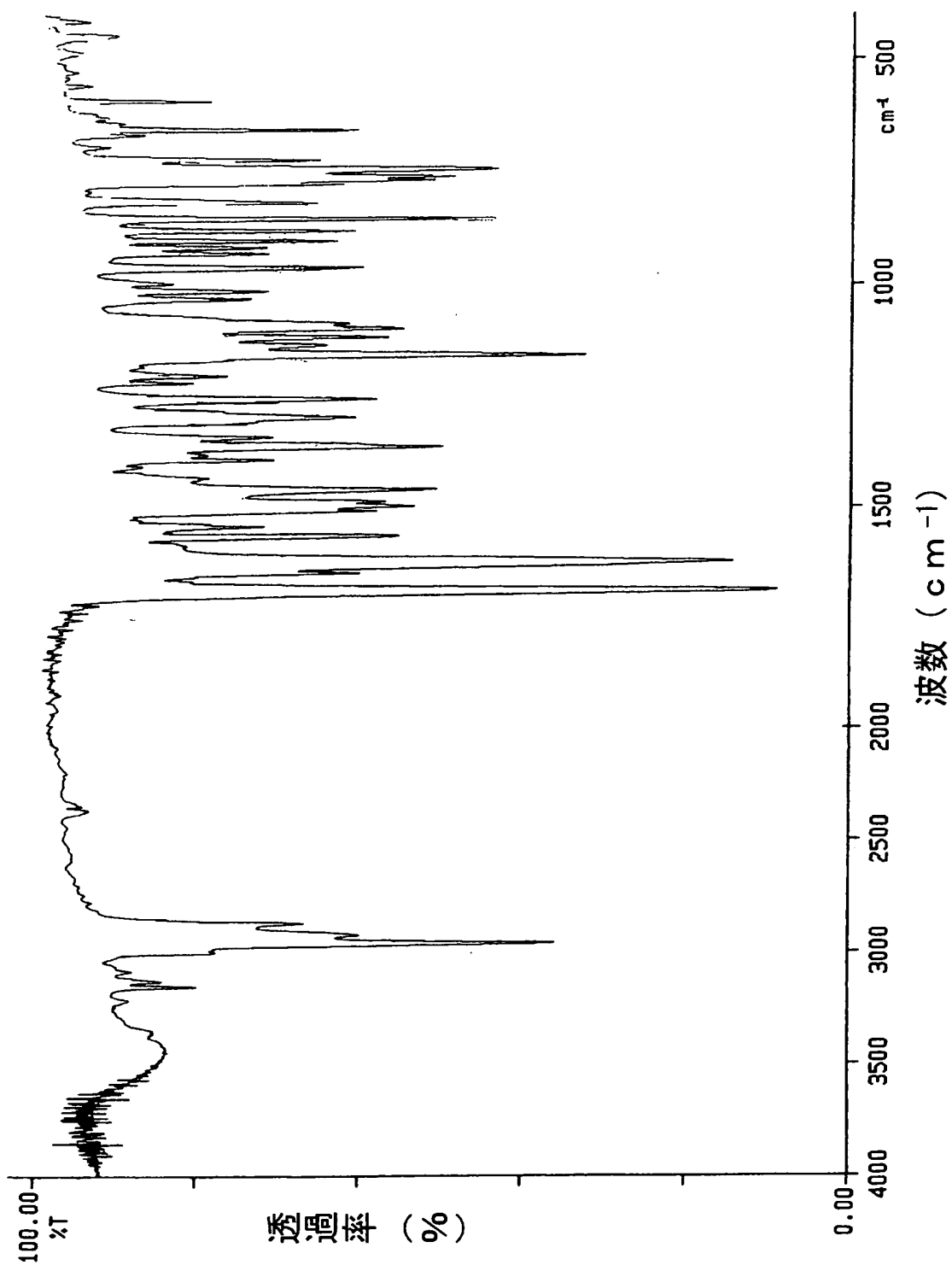
【図 46】



【図 47】

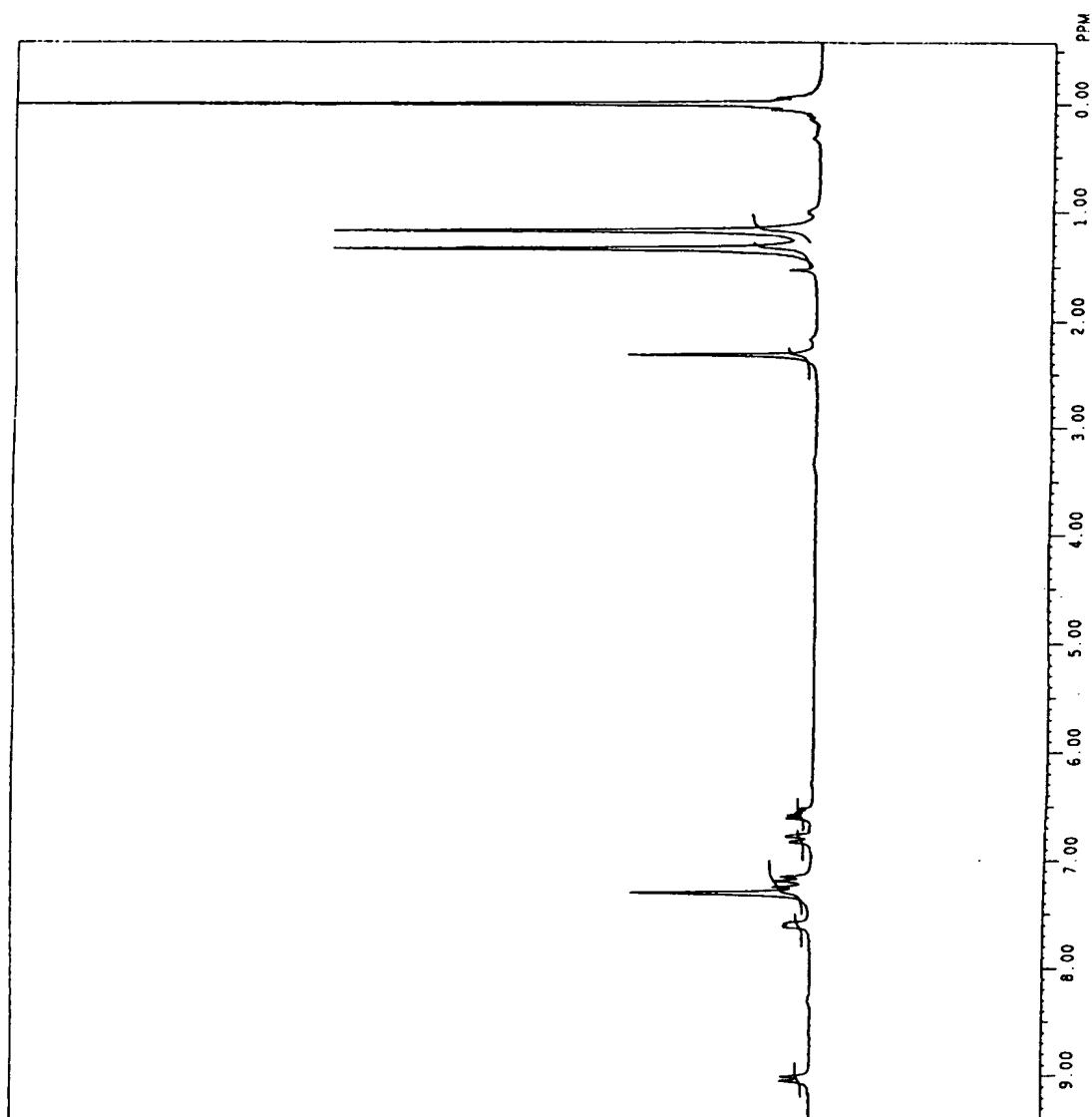


【図 48】

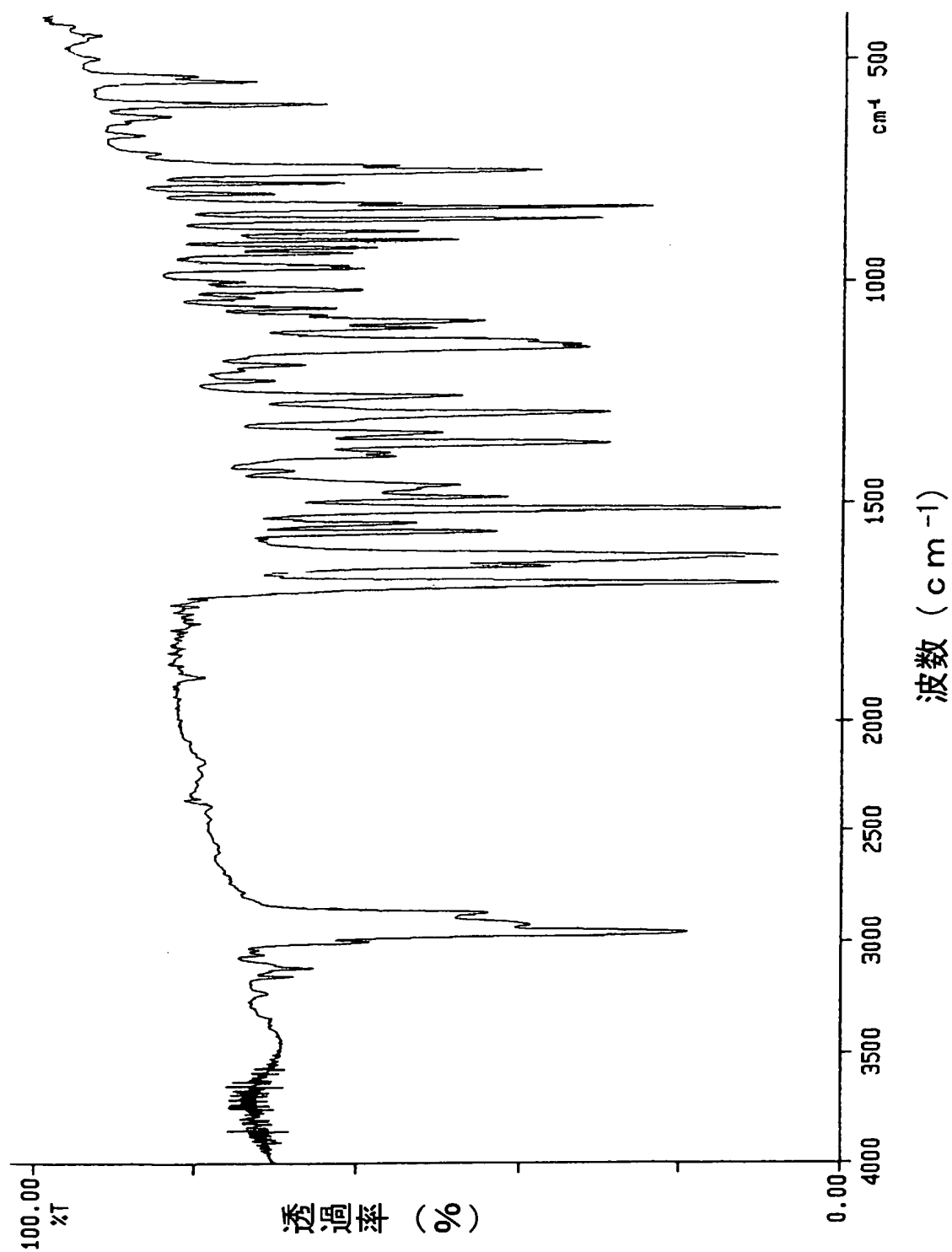




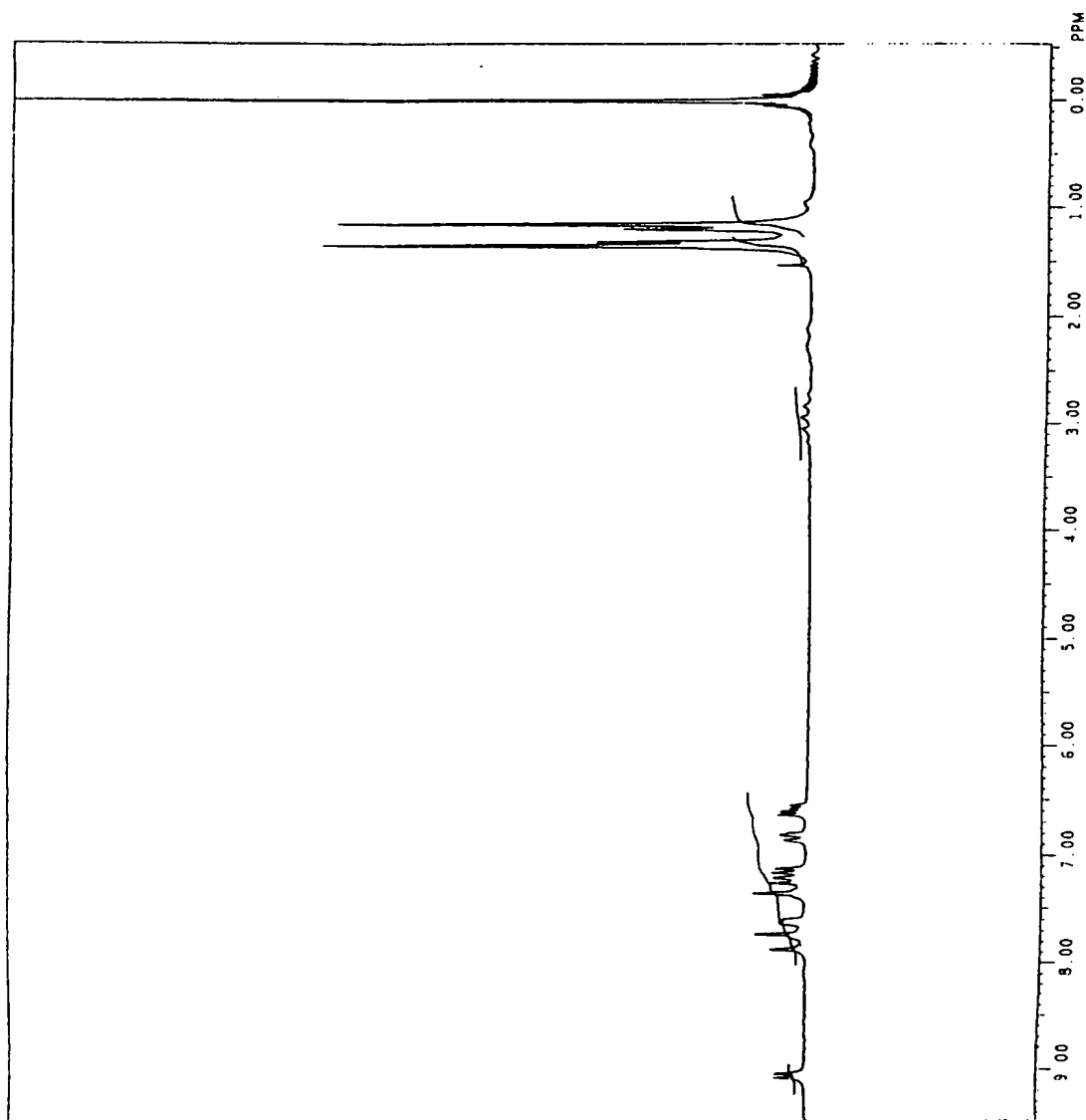
【図 49】



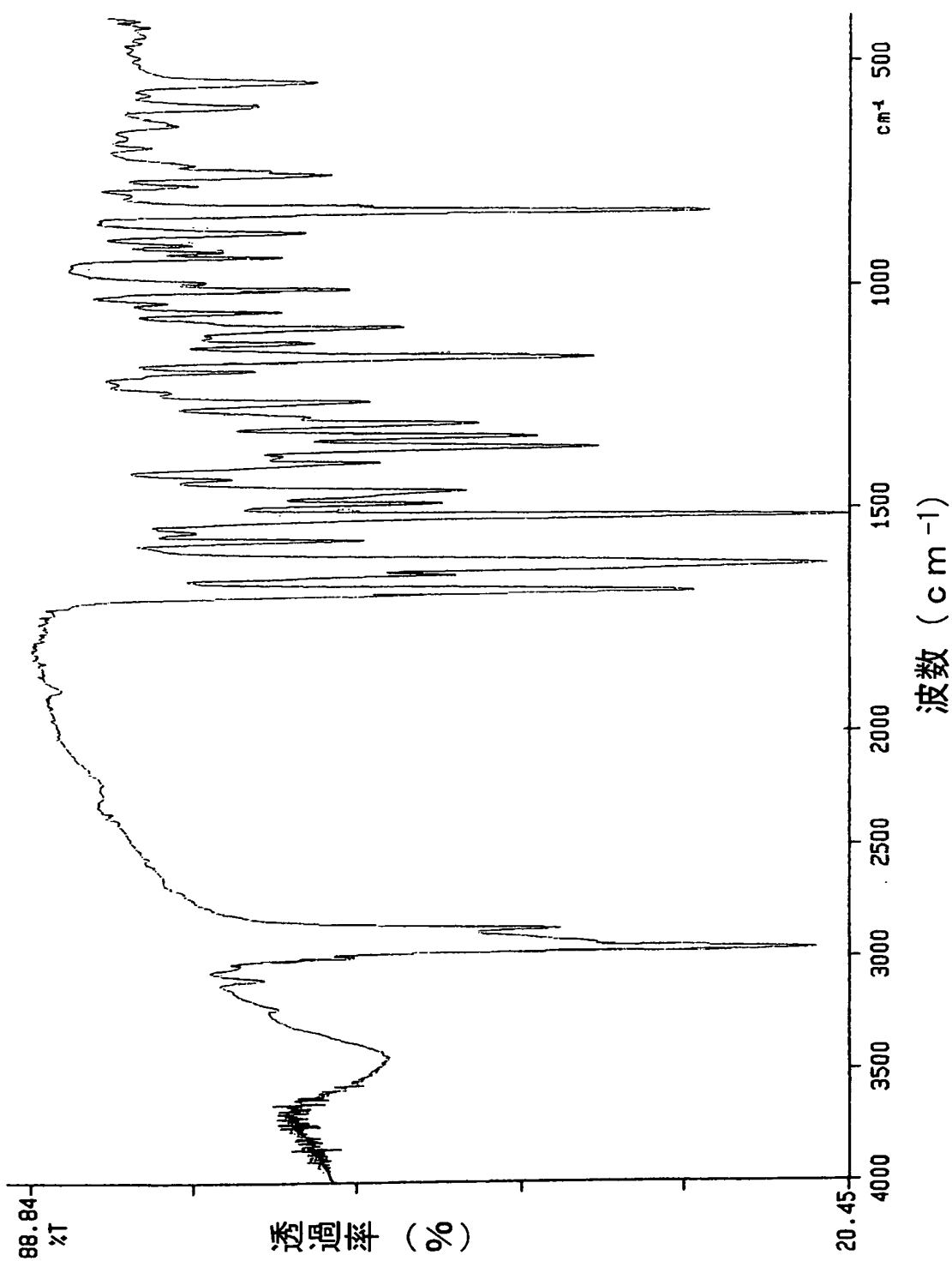
【図 50】



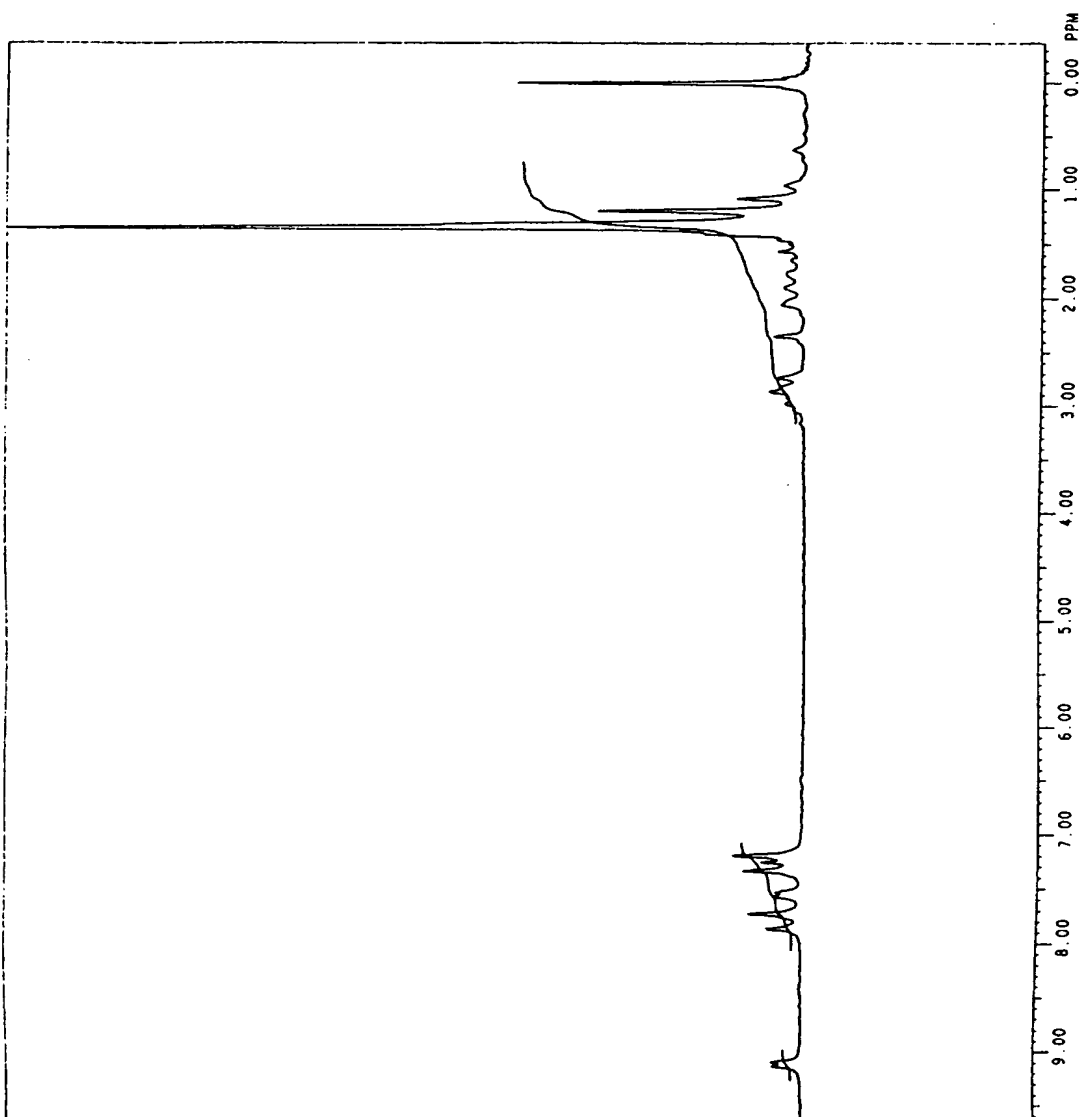
【図 5 1】



【図 52】



【図 53】



【書類名】 要約書

【要 約】

【課題】 感光層中に高濃度で分散でき、電子移動度が速い電子移動物質を提供する。

【解決手段】 下記一般式(1)、

【化161】



(前記一般式(1)の置換基 $R_1 \sim R_4$ は、水素原子と、シアノ基と、ニトロ基と、ハロゲン原子と、ヒドロキシ基と、アルキル基と、アリール基と、複素環基と、エステル基と、アルコキシ基と、アラルキル基と、アリル基と、アミド基と、アミノ基と、アシル基と、アルケニル基と、アルキニル基と、カルボキシ基と、カルボニル基と、カルボン酸基とからなる群より選択されるいずれか1種類の置換基である。置換基Xは酸素と、イオウと、 $=C(CN)_2$ からなる群より選択されるいずれか1種類の置換基である。置換基Wは4員環以上8員環以下の環である。)で表される化合物を電子移動剤に用い、感光層中に含有させる。

【選択図】 なし

認定・付加情報

特許出願の番号	特願 2 0 0 1 - 2 7 4 8 6 1
受付番号	5 0 1 0 1 3 3 3 9 7 0
書類名	特許願
担当官	小暮 千代子 6 3 9 0
作成日	平成 1 3 年 9 月 1 7 日

< 認定情報・付加情報 >

【提出日】 平成 13 年 9 月 11 日

次頁無

特願 2 0 0 1 - 2 7 4 8 6 1

出 願 人 履 歴 情 報

識別番号

[ 0 0 0 0 0 2 0 3 7 ]

1. 変更年月日

1 9 9 0 年 8 月 2 8 日

[変更理由]

新規登録

住 所

東京都千代田区大手町 2 丁目 2 番 1 号

氏 名

新電元工業株式会社



特願 2 0 0 1 - 2 7 4 8 6 1

出 願 人 履 歴 情 報

識別番号

[ 0 0 0 1 8 0 1 2 8 ]

1. 変更年月日

1 9 9 0 年 8 月 2 3 日

[変更理由]

新規登録

住 所

山梨県甲府市宮原町 1 0 1 4

氏 名

山梨電子工業株式会社

特願 2 0 0 1 - 2 7 4 8 6 1

出 願 人 履 歴 情 報

識別番号

[ 0 0 0 1 3 5 7 6 0 ]

1. 変更年月日

1 9 9 0 年 8 月 1 4 日

[変更理由]

新規登録

住 所

東京都中央区日本橋堀留町 1 丁目 3 番 1 8 号

氏 名

株式会社パーマケム・アジア